



Rupture et délamination de films minces

Joel Marthelot

► To cite this version:

Joel Marthelot. Rupture et délamination de films minces. Autre [cond-mat.other]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2014. Français. NNT : 2014PA066085 . tel-01037916

HAL Id: tel-01037916

<https://pastel.archives-ouvertes.fr/tel-01037916>

Submitted on 23 Jul 2014

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

UNIVERSITÉ PIERRE ET MARIE CURIE

THÈSE DE DOCTORAT

École doctorale :
LA PHYSIQUE DE LA PARTICULE À LA MATIÈRE CONDENSÉE
(ED 389)

JOËL MARTHELOT

RUPTURE ET DÉLAMINATION DE FILMS MINCES

Thèse dirigée par :
BENOÎT ROMAN & JOSÉ BICO
co-encadrée par :
DAVY DALMAS & JÉRÉMIE TEISSEIRE

soutenue le 18 juin 2014 devant le jury composé de :

Mokhtar Adda-Bedia
Jean-Christophe Géminard
John W. Hutchinson
Jean-Jacques Marigo
Stéphane Roux
Benoît Roman

Examineur
Rapporteur
Examineur
Rapporteur
Examineur
Directeur de Thèse

Table des matières

Table des matières	i
1 Introduction	1
2 Survol de la mécanique de la rupture.	5
2.1 Rupture fragile : une approche en contrainte	8
2.1.1 Singularité des contraintes	8
2.1.2 Critère de propagation : théorie d'Irwin	9
2.1.3 Chemin de fissure : principe de symétrie locale	10
2.2 Rupture fragile : une approche énergétique	11
2.2.1 Taux de restitution d'énergie et critère de Griffith	11
2.2.2 Chemin de fissure : maximum du taux de restitution d'énergie.	12
2.3 Équivalence des approches en contrainte et en énergie	13
2.3.1 Formule d'Irwin	13
2.3.2 Équivalence des critères pour une propagation régulière.	14
2.4 Fissure et délaminage de couches minces, film en tension	14
2.4.1 Fissuration de film mince	15
2.4.2 Délaminage de film mince en tension.	21
2.4.3 Conclusion pour les films en tension : critère de rupture et de délaminage.	27
3 Coopération entre fracture et délaminage : duos, spirales et croissants	29
3.1 Introduction : des motifs de fragmentation inhabituels	31
3.1.1 Deux expériences étonnantes	31
3.1.2 Dans des couches d'intérêt industriels	32
3.1.3 Dans des expériences macroscopiques	34
3.1.4 Des caractéristiques communes surprenantes et inexpli- quées.	35
3.2 Observations expérimentales	37
3.2.1 Récapitulatif des propriétés du système expérimental.	38
3.2.2 Duos et fissures suiveuses : un mode collaboratif déla- minage/fissure	38

3.2.3	Taille des duos W_2 et des fissures suiveuses W_1	42
3.2.4	Rupture de films stables : un argument en régime permanent.	44
3.2.5	Conclusion	46
3.3	Duo de fissures simultanées	46
3.3.1	Approche énergétique	47
3.3.2	Champs de déformations dans une languette	50
3.3.3	Une taille stable : critère du maximum du taux de restitution d'énergie	52
3.3.4	Détermination des paramètres élastiques : calcul par éléments finis	55
3.3.5	Retour au critère de Griffith	58
3.3.6	Une taille stable : principe de symétrie locale	59
3.3.7	Influence des propriétés mécaniques sur la largeur W_2	60
3.3.8	Conclusion	63
3.4	Fissures suiveuses : spirale et grand croissant	63
3.4.1	Une taille stable : critère du maximum du taux de restitution d'énergie	64
3.4.2	Un modèle simple pour décrire la propagation des fissures.	66
3.4.3	Conclusion	69
3.5	Diagramme de configuration : zoom	69
3.6	Interaction de plusieurs fissures	71
3.6.1	Trois fissures	71
3.6.2	Et pour N fissures ?	73
3.6.3	Jouons avec W_1 et W_2	74
3.6.4	Sensibilité aux défauts.	75
3.6.5	Conclusion	76
3.7	Conclusions et prolongements	77
3.8	Annexe expérimentale : caractérisation des couches de SOG	79
3.8.1	Mesure des contraintes résiduelles	79
3.8.2	Détermination des modules élastiques	79
3.8.3	Énergie de fissure du film et énergie d'adhésion.	80
3.9	Annexe : Prédiction numérique du chemin de fissures.	84
3.9.1	Duo de fissures	84
3.9.2	Fissure suiveuse	84
4	Dynamique : petits croissants, cercles et étoiles	87
4.1	Diagramme de configuration étendu	89
4.2	Un problème de vitesse.	91
4.2.1	Vitesse des différents modes observés	92
4.2.2	Mesures de vitesses	93
4.2.3	Conclusion	96
4.3	Compétition entre fissures isolées et collaboration délamination-rupture	96

4.3.1	Scénario 1 : branchement de fissures à une interface. . .	97
4.3.2	Scénario 2 : compétition entre délamination en coin et fissure isolée	97
4.3.3	Conclusion	98
4.4	Rapport d’aspect du croissant	99
4.4.1	Compétition entre fissures suiveuse et délamination . . .	99
4.4.2	Direction de propagation de la fissure en fonction du front de délamination.	101
4.4.3	Autre critère d’arrêt géométrique	103
4.4.4	Forme des fronts de délamination après propagation . .	103
4.4.5	Conclusion	106
4.5	Motifs à “grand” Γ/G_c : étoiles, cercles, spirales de dessiccation	107
4.5.1	Nucléation assistée par la délamination : étoiles	107
4.5.2	Cercles	108
4.5.3	Spirale de dessiccation	111
4.5.4	Rebonds de fissures isolées	112
4.6	Conclusions et prolongements	113
5	Fissure sur substrat flexible	119
5.1	Introduction : Fragmentation macroscopique d’une couche de peinture	123
5.1.1	Une couche de peinture sur une membrane de latex. . .	123
5.1.2	Une couche de peinture sur un substrat de polymère. . .	125
5.1.3	Bilan : influence de la longueur élastique de décharge- ment sur la fragmentation	125
5.2	Monocouche fragile sur substrat plastique : observations expé- rimentales	127
5.2.1	Propriétés mécaniques du substrat	127
5.2.2	Fragmentation uniaxiale : 3 régimes	128
5.2.3	Fissures isolées (régime 1) : un problème de défauts . .	130
5.2.4	Interaction élastique entre fissures (régime 2)	133
5.2.5	Saturation plastique (régime 3) : localisation de la dé- formation dans le substrat	135
5.2.6	Bilan des observations expérimentales	137
5.3	Monocouche fragile : un modèle pour un substrat élastique . .	138
5.3.1	Substrat élastique : approche de Xia et Hutchinson . . .	139
5.3.2	Calcul du taux de restitution d’énergie	141
5.3.3	Propagation simultanée ou séquentielle	143
5.3.4	Conclusion	145
5.4	Monocouche fragile : un modèle pour un substrat élasto-plastique	145
5.4.1	Extension de l’approche de Xia et Hutchinson	145
5.4.2	Calcul du taux de restitution d’énergie élastique.	146
5.4.3	Limite élastique et parfaitement plastique	147
5.4.4	Prédiction et paramètres du modèle	149

5.4.5	Comparaison expérimentale	151
5.4.6	Correction de la loi de comportement et de la taille élastique	152
5.4.7	Conclusion	154
5.5	Vitesse de propagation des fissures.	154
5.6	Empilement de couches d'argent et d'oxyde : fragile ou ductile ?	155
5.6.1	Moncouche ductile d'argent.	157
5.6.2	Multicouche d'argent et d'oxyde de zinc	159
5.7	Conclusions et prolongements	162
6	Cloques ou rides : renforcement d'une interface par dissipation plastique	163
6.1	Introduction : rides et cloques	165
6.1.1	Rides de compression	165
6.1.2	Cloques de délamination	167
6.2	Compression d'une monocouche d'oxyde de zinc	167
6.2.1	Chargement inhomogène : ondulation localisée	168
6.2.2	Rides	170
6.2.3	Cloques : énergie d'adhésion, nombre de cloques	171
6.3	Compression d'un multicouche oxyde/argent.	175
6.4	Conclusion et ouverture	177
A	Soft Janssen	181
	Bibliographie	193

CHAPITRE 1

Introduction

Les films minces sont abondamment utilisés par les industriels pour protéger ou fonctionnaliser les surfaces : barrière thermique de turbines à gaz, films barrières d’emballages alimentaires, couches anti-reflets de vitrages (figure 1.1).



FIGURE 1.1: (A) L’irisation des ailes du papillon *Morpho rhetenor* (Vukusic & Sambles (2003)) provient de l’alternance de couches minces d’air de faible indice optique ($n=1$) et de cuticule de chitine d’indice optique élevé ($n=1.6$). (B) En 1817, Joseph Fraunhofer (1817) obtient les premiers verres anti-reflets en les traitant avec de l’acide chlorhydrique. Depuis ces travaux pionniers, la fonctionnalisation du verre par le dépôt d’empilements de couches minces métalliques ou d’oxyde permet d’obtenir des propriétés optiques et thermiques intéressantes comme les verres EKO de Saint-Gobain qui réfléchissent les rayonnements de l’infrarouge lointain.

Les contraintes mécaniques peuvent cependant entraîner la ruine de ces structures par la propagation de fissures ou leur décollement. Les critères de stabilité mécanique sont connus et utilisés par l'industrie pour concevoir de nouveaux design (Hutchinson & Suo (1992)). Nous présenterons les principaux outils permettant de prédire les seuils de propagation et le chemin des fissures dans le chapitre 2. Pourtant, les développements récents d'applications où la rigidité du substrat est faible devant celle de la couche (électronique ou photovoltaïque flexible), ou présentant une faible énergie d'adhésion entre le film et le substrat (matériau biologique, substrat polymère) amènent à s'interroger sur les limites de validité de ces critères.

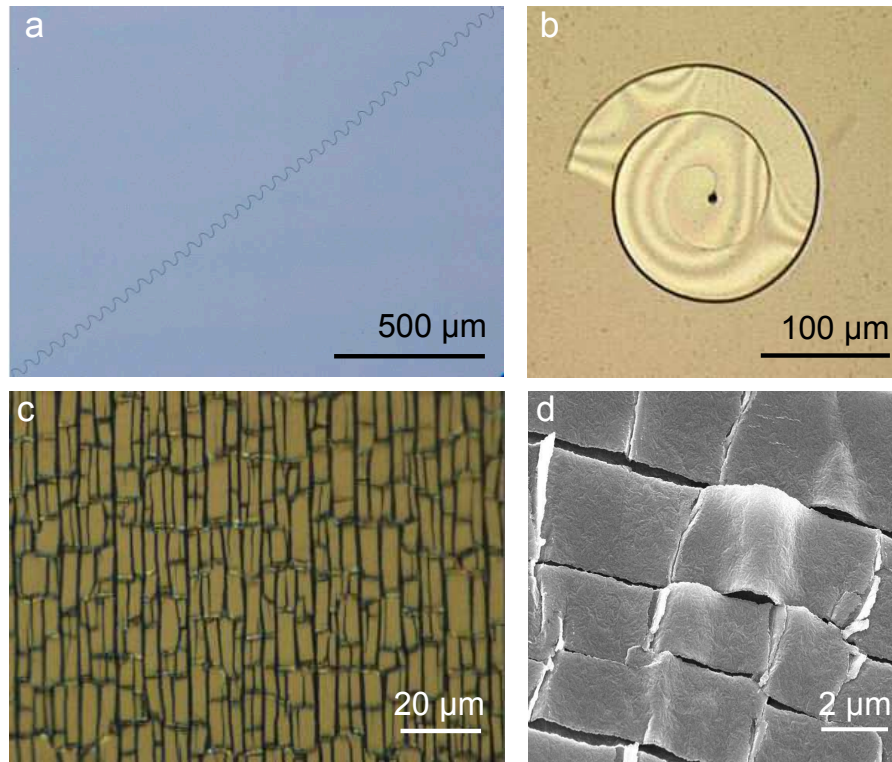


FIGURE 1.2: Fissures en croissants (A) ou spirale (B) dans une couche sol-gel micrométrique adhérant faiblement à un substrat de silicium. Fissures (C) et délamination (D) d'une couche nanométrique d'oxyde déposé sur un substrat de polymère.

Nous nous intéresserons aux conditions de propagation et aux motifs de fissures observés dans deux systèmes modèles :

- dans une couche sol-gel présentant *une faible adhésion avec le substrat* : nous observons des motifs étonnamment réguliers (allées de croissants (figure 1.2a) ou spirale (figure 1.2b)). Comment décrire ce nouveau mode de propagation ? Sous quelles conditions l'observe-t-on (chapitre 3) ?

Quelle est la dynamique de la propagation ? Quel phénomène gouverne la sélection des motifs (chapitre 4) ?

- dans une couche d’oxyde nanométrique déposée sur un *substrat de polymère flexible*. Les déformations imposées par le substrat génèrent des contraintes dans la couche d’oxyde qui se fragmente (figure 1.2c) et délamine (figure 1.2d). Comment prédire la propagation et la distribution spatiale des fissures ? Quelle est l’influence de la faible rigidité du substrat et de sa plasticité (chapitre 5) ? Comment comprendre la propagation des cloques de délamination (chapitre 6) ?

D’un point de vue industriel, nous devons connaître les conditions de propagation des fissures dans la couche pour éviter sa ruine et assurer le maintien de sa fonction. Nous nous attacherons particulièrement dans ce manuscrit aux conditions de stabilité de ces films lorsqu’ils sont soumis à une contrainte mécanique ou résiduelle.

Néanmoins, une autre piste d’intérêt industriel est de tirer partie de la propagation des fissures comme d’un moyen simple de structurer une grande surface à faible coût. Nous étudions par exemple des motifs d’une grande régularité géométrique qui ouvrent des possibilités de design de film à petite échelle. Nous essayerons ainsi de prédire les chemins de fissure et les critères de sélection des différents motifs.

CHAPITRE 2

Survol de la mécanique de la rupture.



"Il viaggio N.4" - Alberto Burri . (Fondazione Palazzo Albizzini Collezione Burri, Pérouse, Italie)

La taille des silex par nos cousins disparus (*Australopithecus garhi* Semaw *et al.* (2003)) prouve que nous maîtrisons empiriquement la propagation des fissures (dynamiques) dans les matériaux fragiles depuis quelques millions d'années (figure 2.1). Cette technique est revisitée avec énergie par Jacques Pélegrin (2000). Cependant les concepts fondamentaux permettant de décrire la propagation des fissures sont étonnamment récents. Alors que les phénomènes capillaires et les instabilités dues aux effets de tension de surface ont été étudiés dès le XVII^{ème} siècle, la description énergétique de la propagation de fissure en mécanique de la rupture est postérieure au fondement de la mécanique quantique et de la physique statistique. Dès 1708, Hauksbee (1712) étudie en effet l'ascension capillaire dans un tube et en 1873, Plateau et Rayleigh décrivent déjà des instabilités complexes d'une colonne de liquide déstabilisée par la tension de surface (Rayleigh (1879)).

Il faudra attendre 1921 pour que Griffith (1921), motivé par la mesure de la tension de surface du verre, considère l'énergie nécessaire à la création d'une nouvelle surface lors de la propagation d'une fissure. À partir de ce concept fondamental, les outils décrivant les conditions de propagation et permettant de prédire la direction des fissures dans des matériaux homogènes ont été développés au cours du XX^{ème} siècle. Nous présenterons succinctement certains de ces outils dans ce chapitre d'introduction. Les instabilités, couplant rupture, délaminage et élasticité, sont un domaine d'étude plus récent encore et conduisent à des motifs aussi esthétiques qu'intriguants. (figure 2.2).

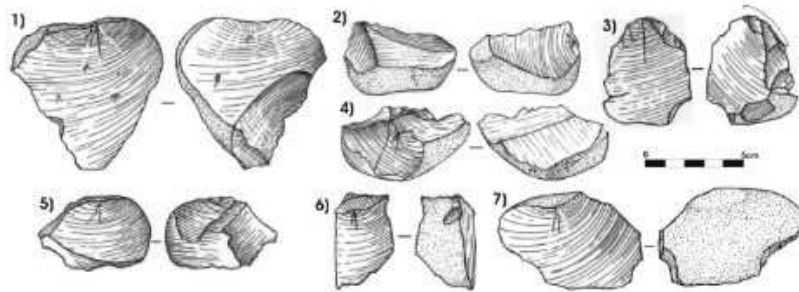


FIGURE 2.1: Expérience historique (2,6 millions d'années) de mécanique de la rupture dans l'Éthiopie actuelle (d'après Semaw *et al.* (2003)).

Nous commencerons par présenter l'outil le plus courant de la description de la propagation des fissures dans un matériau fragile : la théorie mécanique linéaire élastique de la rupture et les critères permettant de prédire la propagation et le chemin des fissures en suivant cette approche (section 2.1). Nous nous intéresserons ensuite à une approche qui considère le taux de restitution d'énergie élastique lors de la propagation et nous introduirons le critère du maximum de ce taux pour prédire la propagation des fissures (section 2.2). Nous rappellerons que ces deux approches sont exactement équivalentes pour

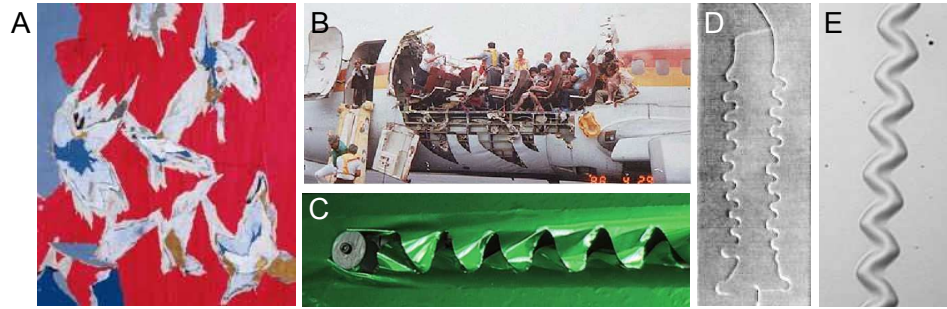


FIGURE 2.2: (A) Exemple d'instabilité couplant rupture/délamination et élasticité dans une affiche de métro ("L'éclatement des célestins" de Jacques Villeglé (1964) étudié par Hamm *et al.* (2008) taille caractéristique 10 cm). Ces mêmes déchirures en pointe apparaissent dans une expérience macroscopique (B) réalisée accidentellement par Aloha Airlines entre Hilo et Honolulu (1988, taille caractéristique 2 m). Des fissures oscillantes se propagent dans une feuille mince (C) découpée par un objet de taille caractéristique plus grande que l'épaisseur de la feuille (Audoly *et al.* (2005) taille caractéristique 1 cm) ou dans une fine plaque de verre (D) soumise à des contraintes thermiques (Yuse & Sano (1993) taille caractéristique 1 mm). Des cloques en forme de *cordons de téléphone* (E) apparaissent dans une couche mince soumise à des contraintes résiduelles de compression (étudiées par Moon *et al.* (2002) puis Faou *et al.* (2012), taille caractéristique 10 μm).

une propagation régulière (section 2.3). Nous appliquerons ensuite ces outils à la propagation de fissures dans des films minces et à l'interface entre films minces et substrats pour des films en tension (section 2.4)

Nous chercherons particulièrement à déterminer :

- les critères de propagation d'une fissure isolée dans un film mince
- les critères de délamination d'un film en tension

2.1 Rupture fragile : une approche en contrainte

Nous présentons les outils principaux de la théorie mécanique linéaire élastique de la rupture : la forme des contraintes en tête de fissure (2.1.1), le critère de propagation (2.1.2) et du choix de la direction de propagation (2.1.3). Cette approche est couramment utilisée dans la mécanique de la rupture et les outils numériques utilisés par les ingénieurs sont développés à partir de cette description.

2.1.1 Singularité des contraintes

Dès 1913, Inglis remarqua que les champs de contraintes appliqués sur un matériau fissuré sont très amplifiés en tête de fissure. Cette propriété est dé-

crite par la théorie élastique linéaire. Nous considérons une fissure droite en déformation plane (resp. antiplane). En suivant Williams *et al.* (1952), nous pouvons montrer que quelque soit la géométrie du corps étudié et le chargement appliqué, l'expression asymptotique (c'est à dire le terme dominant du développement) des contraintes σ_{rr} , $\sigma_{\theta\theta}$ et $\sigma_{r\theta}$ dépend uniquement de trois constantes K_I , K_{II} et K_{III} , appelées facteurs d'intensité des contraintes (figure 2.3b).

Le mode I provoque une ouverture de la fissure, les modes II et III provoquent un cisaillement plan et antiplan. Les dépendances en r et en θ sont universelles et le terme dominant dans le développement des contraintes est proportionnel à K/\sqrt{r} . Nous rappelons l'expression asymptotique des contraintes :

$$\begin{aligned}\sigma_{rr} &= \frac{K_I}{4\sqrt{2\pi r}} \left(5 \cos(\theta/2) - \cos(3\theta/2) \right) + \frac{K_{II}}{4\sqrt{2\pi r}} \left(-5 \sin(\theta/2) + 3 \sin(3\theta/2) \right) \\ \sigma_{\theta\theta} &= \frac{K_I}{4\sqrt{2\pi r}} \left(3 \cos(\theta/2) + \cos(3\theta/2) \right) + \frac{K_{II}}{4\sqrt{2\pi r}} \left(-3 \sin(\theta/2) - 3 \sin(3\theta/2) \right) \\ \sigma_{r\theta} &= \frac{K_I}{4\sqrt{2\pi r}} \left(\sin(\theta/2) + \sin(3\theta/2) \right) + \frac{K_{II}}{4\sqrt{2\pi r}} \left(\cos(\theta/2) + 3 \cos(3\theta/2) \right)\end{aligned}\quad (2.1)$$

Dans la théorie linéaire élastique, les champs de contrainte et de déformation divergent à la pointe de la fissure. Cette description est doublement problématique. D'une part, la théorie élastique suppose des contraintes infinitésimales en contradiction avec la divergence prédite. D'autre part, les contraintes ne divergent pas physiquement et il existe une zone d'endommagement en tête de fissure (que nous considérerons petite et que nous négligerons dans la description de la rupture fragile). Cette hypothèse de confinement de la zone plastique (small scale yielding) est la clef de l'utilisation d'une description élastique pour la propagation des fissures.

Nous espérons donc que le comportement en $1/\sqrt{r}$ est valable dans une zone intermédiaire (anneau de validité des développements asymptotiques des facteurs d'intensité de contrainte K dans la figure 2.3a) entre une région bornée par la taille de la zone plastique près de la fissure (pour $|r|$ tendant vers zéro) et une région où le développement asymptotique au voisinage de zéro n'est plus valable (à $|r|$ grand) à cause de la géométrie du corps et du chargement.

2.1.2 Critère de propagation : théorie d'Irwin

La théorie d'Irwin est une proposition heuristique pour décrire la propagation des fissures dans le cas d'un chargement en mode I pur. L'idée la plus simple serait de poser un critère sur une contrainte critique d'ouverture $\sigma_{\theta\theta}(\theta = 0)$. Comme la contrainte diverge en pointe de fissure dans la description élastique, la fissure se propagerait pour tout chargement. Irwin propose de gommer la singularité en posant un critère sur le facteur d'intensité des contraintes d'ouverture K_I . Celui-ci caractérise la sévérité de la divergence

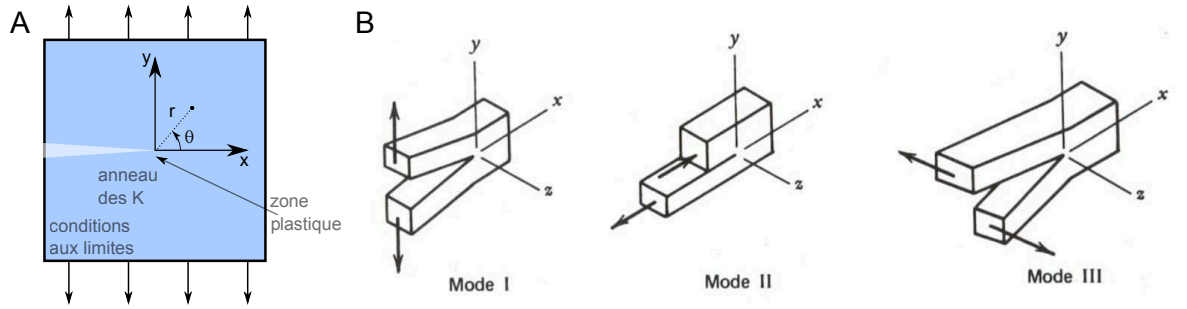


FIGURE 2.3: (A) Le développement asymptotique des contraintes près de la fissure est valable dans une zone intermédiaire (anneau de validité des développements asymptotiques des facteurs d'intensité de contrainte K) bornée par la zone plastique pour les petits $|r|$ et les champs élastiques imposés par les conditions aux limites à grand $|r|$. (B) L'expression asymptotique des contraintes en pointe de fissure peut-être décomposée selon trois modes : ouverture (mode I), cisaillement plan (mode II) et antiplan (mode III).

du champs de contrainte d'ouverture. Ce critère découle du confinement de la zone plastique.

L'hypothèse sous-jacente est qu'il existe une zone (l'anneau de validité des K) où le développement des champs élastiques est en $1/\sqrt{r}$. Les champs élastiques communiquent les contraintes imposées des bords de l'échantillon à la zone plastique. La zone plastique ressent alors un chargement uniquement déterminé par les facteurs d'intensité des contraintes. Un critère de propagation peut donc s'exprimer en fonction des coefficients K . La détermination des facteurs d'intensité des contraintes est alors suffisante pour prédire la propagation.

Irwin définit une ténacité K_{Ic} (en $MPa\sqrt{m}$) caractéristique intrinsèque du matériau. La propagation de la fissure est possible dès que le facteur d'intensité des contraintes atteint la ténacité du matériau. Cette hypothèse est vérifiée en pratique et nous pouvons mesurer la ténacité du matériau indépendamment de la géométrie et du chargement.

2.1.3 Chemin de fissure : principe de symétrie locale

Pour prédire la direction de propagation des fissures, Goldstein & Salganik (1974) proposent un critère de symétrie locale. La direction sélectionnée est telle que le mode de cisaillement plan K_{II} s'annule. Le champ de contrainte devant la fissure est symétrique par rapport au plan de fissure si $K_{II} = 0$. Dans un matériau isotrope, la symétrie indique donc que la propagation est droite : c'est le principe de symétrie locale. Si un cisaillement apparaît, il dévie la direction de propagation de la fissure. Pour la propagation de fissure dans un milieu tridimensionnel isotrope, la trajectoire est telle que la fissure

se propage en mode I pur. Un chargement qui place la pointe de fissure en situation de mixité modale provoque un branchement (c'est à dire un changement de direction de la fissure ou un *kink*) qui ramène la trajectoire vers une propagation en mode I.

Notons que le principe de symétrie locale s'écroule pour un matériau anisotrope ou hétérogène (et il est en particulier non valable pour la propagation d'une fissure à une interface faible). Il n'existe pas de formule analytique reliant les facteurs d'intensité après branchement à ceux avant branchement mais He & Hutchinson (1988) et Leblond (1989) ont obtenu un développement limité au voisinage du point de branchement des facteurs d'intensité de contraintes après branchement. Les facteurs d'intensité après branchement dépendent uniquement des facteurs d'intensité avant branchement et de l'angle de branchement θ . Une difficulté est de relier l'existence de branchement à la taille caractéristique de process de la fissure.

2.2 Rupture fragile : une approche énergétique

L'approche énergétique de la rupture proposée par Griffith il y a un siècle a permis d'introduire le concept de taux de restitution d'énergie élastique lors de la propagation des fissures. Nous présenterons le critère de propagation proposé par Griffith (2.2.1) et celui du choix de la direction de propagation (2.2.2). L'essor du calcul numérique des répartitions de contraintes en tête de fissure a limité le développement de cette approche énergétique. Néanmoins, cette dernière a été récemment formalisée et étendue dans l'approche variationnelle de la mécanique de la rupture (Bourdin *et al.* (2008)).

2.2.1 Taux de restitution d'énergie et critère de Griffith

Griffith (1921) propose une approche énergétique pour décrire les conditions de propagation d'une fissure, en supposant l'existence d'une énergie de rupture par unité de surface G_c , en analogie avec la tension de surface observée dans les phénomènes capillaires pour les liquides à petite échelle. Ainsi une fissure se propage dès qu'elle relâche suffisamment d'énergie pour compenser le coût nécessaire pour séparer les lèvres de la fissure. Nous définissons le taux de restitution d'énergie G comme la variation de l'énergie potentielle totale P (*i.e.* le travail des forces extérieures + l'énergie potentielle élastique) lorsque la fissure avance d'une longueur dl :

$$G = -\frac{dP}{dl} \quad (2.2)$$

L'énergie élastique est ainsi transférée du volume solide vers la pointe de la fissure. Dans le cas d'une rupture très rapide (de l'ordre de la vitesse de propagation du son dans le matériau), ce transfert est limité par la vitesse de propagation des ondes élastiques qui transportent l'énergie vers la pointe de

fissure (rupture dynamique). Nous nous limiterons ici à l'étude de phénomènes quasi-statiques où toute l'énergie élastique est transférée instantanément dans le solide.

Il y a propagation de la fissure dès que le taux de restitution d'énergie atteint l'énergie de fissure :

$$G = G_c \quad (2.3)$$

Physiquement, G_c n'est pas une énergie de surface thermodynamique équivalente à la tension de surface d'un liquide. C'est une dissipation par unité de surface localisée dans la zone d'endommagement en pointe de fissure. Cette dissipation provient de l'hétérogénéité de l'interface à petite échelle, de la plasticité du matériau ou d'une zone micro-fissurée à l'échelle intermédiaire. Ces dissipations sont volumiques, mais comme la région concernée est très petite, nous supposons que sa forme est constamment la même au cours de la propagation et que G_c est une constante caractéristique du matériau.

2.2.2 Chemin de fissure : maximum du taux de restitution d'énergie.

Pour connaître la direction de propagation du front de fissure, Erdogan & Sih (1963) proposent d'imaginer que le chargement augmente progressivement et que la fissure se propage dans la première direction θ où G atteint G_c . Dans un milieu isotrope, la fissure choisit son orientation de façon à maximiser son taux de restitution d'énergie (Chambolle *et al.* (2009)).

$$\frac{\partial G}{\partial \theta} = 0 \quad (2.4)$$

Représentons schématiquement cette condition, en traçant le taux de restitution d'énergie $G(\theta)$ en fonction de l'angle de propagation et le seuil de propagation G_c . Pour un matériau isotrope, ce seuil ne dépend pas de θ . Pour qu'il y ait propagation, il faut augmenter le chargement (augmenter G) jusqu'à ce qu'un point de la courbe $G(\theta)$ croise G_c (figure 2.4). C'est la direction que choisit la fissure pour se propager.

Cette description est particulièrement utile pour décrire la propagation de fissures dans les milieux anisotropes. Le seuil de propagation dépend alors de l'angle (Hakim & Karma (2005)) et le maximum du taux de restitution s'écrit :

$$\frac{\partial G}{\partial \theta} = \frac{\partial G_c}{\partial \theta} \quad (2.5)$$

Nous observons des directions pour lesquels la propagation est impossible (Takei *et al.* (2013)). Ce même critère a été astucieusement utilisé pour déterminer la direction de propagation de patins frottant sur une surface anisotrope (Chateau & Géminard (2013)).

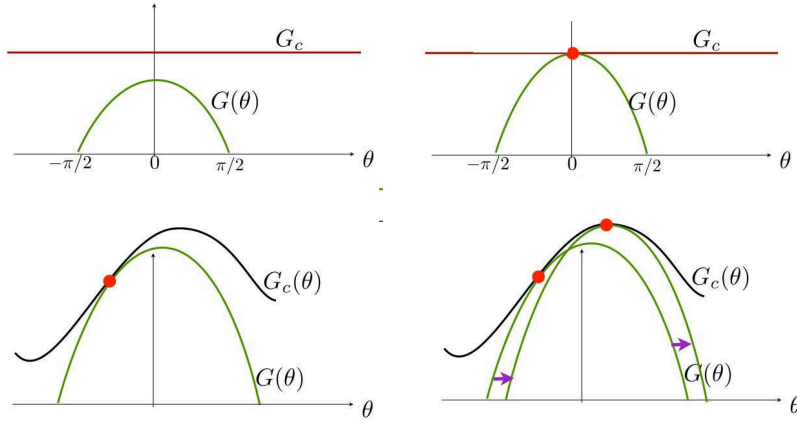


FIGURE 2.4: La fissure se propage dans la première direction θ telle que le taux de restitution d'énergie G atteigne l'énergie de fissure du matériau lorsque nous augmentons le chargement. Cette description permet facilement de tenir compte de l'anisotropie de l'énergie de fissure dans les matériaux en considérant $G(\theta)$.

2.3 Équivalence des approches en contrainte et en énergie

Les deux approches sont en fait compatibles et la formule d'Irwin (1958) établit l'équivalence des critères de propagation dans la théorie de Griffith et d'Irwin (2.3.1). Pour une propagation régulière, le principe de symétrie locale et le maximum du taux de restitution d'énergie qui prédisent le chemin de la fissure sont rigoureusement équivalents (2.3.2).

2.3.1 Formule d'Irwin

La théorie d'Irwin du ($K_I = K_{IC}$) et de Griffith ($G = G_c$) sont équivalentes dans un solide élastique, linéaire, homogène isotrope. Dans la direction initiale de la fissure, le taux de restitution d'énergie G est relié aux facteurs d'intensité des contraintes $K_{I,II,III}$ par la formule d'Irwin :

$$G = \frac{1 - \nu^2}{E} (K_I^2 + K_{II}^2) + \frac{1 + \nu}{E} K_{III}^2 \quad (2.6)$$

où E est le module de Young du matériau et ν son coefficient de Poisson. Ce résultat permet de réconcilier l'approche en énergie (qui considère le taux de restitution dans tout le système) et l'approche en contrainte (qui ne dépend que des singularités des contraintes en tête de fissure). Elle légitime ainsi cette dernière. G ne dépend donc uniquement que de la forme asymptotique

des champs mécaniques au voisinage de la pointe de fissure. Nous notons que si cette formule est valide formellement quel que soit le mode de chargement, elle n'est applicable le plus souvent qu'en mode I, car nous imposons dans les hypothèses une propagation rectiligne (c'est à dire une propagation sans branchement).

G_c et K_{IC} sont caractéristiques des matériaux, indépendants de la géométrie et du chargement de l'échantillon. Ils dépendent néanmoins de facteurs extérieurs. Par exemple la ténacité des métaux décroît fortement avec la température, celle du verre avec l'humidité. La ténacité dépend également de la vitesse de propagation des fissures. Usuellement elle augmente avec la vitesse de propagation en raison d'une dissipation visco-élastique (par exemple des chaînes de polymère lors du pelage d'un adhésif) ou de la limite de la vitesse de diffusion d'une espèce (par exemple l'eau dans la fracture sous-critique du verre). Il faut également tenir compte de la dépendance de G_c et K_{IC} avec le mode de chargement de la fissure, comme la forme de la zone plastique varie en fonction du chargement (notamment pour le cas de fissures se propageant le long d'une interface faible). On introduira cette dépendance dans la section 2.4.2.

2.3.2 Équivalence des critères pour une propagation régulière.

Le critère énergétique et le principe de symétrie locale sont rigoureusement équivalents lorsque la propagation est régulière (sans discontinuité de la tangente au chemin de fissure). Les deux critères prédisent alors que la fissure se propage sans changer de direction si et seulement si la fissure est en mode I (Chambolle *et al.* (2009)). Un avantage du critère énergétique est qu'il peut s'utiliser d'une façon beaucoup plus large (par exemple pour des milieux anisotropes) alors que le principe de symétrie locale est limité aux milieux isotropes en élasticité plane.

Lorsqu'il y a un branchement, Amestoy & Leblond (1992) ont montré que le critère énergétique ne coïncide pas rigoureusement avec le principe de symétrie locale en développant les facteurs d'intensité des contraintes (même si les prédictions des deux critères restent très proches). Cependant, les situations expérimentales que nous examinerons ne présentent pas de branchement. Le principe de symétrie locale et le maximum du taux de restitution d'énergie sont alors rigoureusement équivalents.

2.4 Fissure et délaminage de couches minces, film en tension

Nous nous intéressons maintenant à la mécanique de la rupture d'une couche mince d'épaisseur h_f , de module de Young E_f et de coefficient de

Poisson ν_f solidaire d'un substrat de module de Young E_s et de coefficient de Poisson ν_s . Un film mince est une structure élancée pour laquelle une des dimensions (l'épaisseur h_f) est très petite au regard des deux autres. Nous considérons des films déposés sur des substrats d'épaisseurs très supérieures à l'épaisseur du film ($h_f \ll h_s$ mais nous supposons également que $E_f h_f \ll E_s h_s$). Le dépôt d'une couche mince sur un substrat engendre souvent des contraintes résiduelles qui peuvent entraîner la propagation de fissures dans le film, dans le substrat ou à l'interface entre le film et le substrat. Les origines de ces contraintes résiduelles peuvent être multiples (Doerner & Nix (1988)) : décalage de paramètre de mailles, coalescence de joints de grains, changement de volume dû à des transformations de phase ou provenir de facteurs externes (corrosion, contrainte d'origine thermique, électrostatique...). Les films peuvent être dans un état de tension ou de compression résiduelle par rapport au substrat. Par exemple, une couche de peinture soumise aux rigueurs du climat faïence, le désaccord des coefficients de dilatation thermique de la peinture et du substrat entraîne des contraintes de traction dans la couche de peinture conduisant à la rupture du film. Les écorces d'arbres, les écailles de peinture sur un mur humide, les vernis craquelés sont autant d'exemples courants de motifs de fissures dans la vie quotidienne. Ces motifs ont intéressé les artistes de l'Arte Povera et du spatialisme (comme en témoigne 'Il viaggio N.4' (figure d'ouverture du chapitre), œuvre d'Alberto Burri (1915-1995) dans les années 70).

Les développements industriels des films minces (micro-électronique, photovoltaïque et fonctionnalisation de surface) ont motivé l'étude de leur ruine (Hutchinson & Suo (1992)). Les contraintes résiduelles limitent le design des couches et les procédés de dépôt. Cependant la majorité des études porte sur les conditions de propagation des fissures, l'étude de la morphologie des motifs restant un domaine plus confidentiel.

Dans cette section nous nous focaliserons sur le cas des contraintes résiduelles en tension et le cas en compression sera abordé dans la section (6.1.2). Nous allons décrire l'influence des propriétés élastiques du film et du substrat sur le critère de propagation de fissures dans le film (2.4.1). Puis nous nous intéresserons à la propagation des fissures d'interface entre film et substrat pour un film en tension résiduelle (2.4.2).

2.4.1 Fissuration de film mince

Cas limites : substrat infiniment rigide et infiniment mou.

Examinons tout d'abord les deux cas limites d'un film déposé sur un substrat infiniment mou puis infiniment rigide. Le principe général réside en ce que la fissure se propage si l'énergie relâchée lors de la propagation excède l'énergie de fissure.

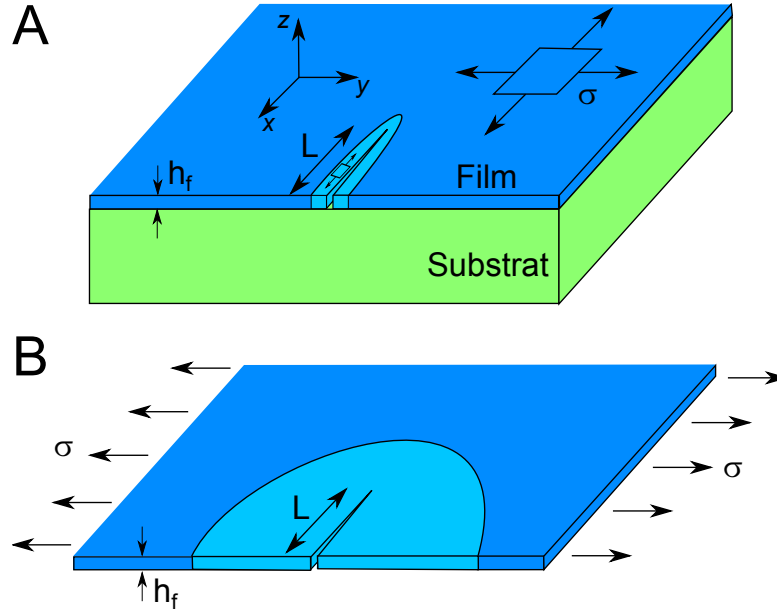


FIGURE 2.5: (A) Si un film mince d'épaisseur h_f est chargé par une contrainte biaxiale σ , l'énergie élastique relâchée autour d'une fissure de longueur L est confinée autour de la fissure. L'énergie relâchée est alors en Lh_f . (B) Si le substrat est infiniment mou, la situation se ramène à celle d'une feuille mince et la zone relâchée est proportionnelle à L^2

Substrat mou

Pour un film déposé sur un substrat infiniment mou, la situation se rapporte à la propagation d'une fissure dans une feuille mince en l'absence de substrat mais soumise à une contrainte de tension. L'apparition d'une fissure de taille L modifie l'état de contrainte dans le film sur une zone de taille typique L . À une contrainte appliquée σ correspond une déformation de l'ordre de σ/E_f . L'énergie relâchée autour d'une fissure est donc la densité d'énergie élastique $\sigma\epsilon/2 \sim \sigma^2/E_f$ dans le volume de film relâché L^2h_f (figure 2.5B). Pour que la fissure se propage, cette énergie doit excéder l'énergie de fracture G_ch_fL . À chargement donné, la longueur de Griffith qui permet la propagation est donc $L_g \sim G_cE_f/\sigma^2$. Inversement à chargement croissant, la propagation est possible pour un défaut initial de taille L lorsque le chargement atteint : $\sigma_c = \sqrt{E_fG_c/L}$.

Substrat rigide

Dans le cas d'un film solidaire d'un substrat infiniment rigide, l'énergie élastique relâchée lors de la propagation est cette fois confinée sur une taille h_f autour de la fissure (figure 2.5A). L'énergie relâchée autour d'une fissure de longueur L est la densité d'énergie élastique $\sigma\epsilon/2 \sim \sigma^2/E_f$ dans le volume de film relâchée h_f^2L . Il y a propagation si cette énergie est supérieure à l'énergie

de fissure G_ch_fL . Pour un chargement σ imposé, il existe donc une épaisseur critique h_c qui permet la propagation : $h_c \sim G_cE/\sigma^2$. Les films plus fins que cette épaisseur critique sont stables tandis que la propagation est possible pour les films plus épais.

En illustration, étalons une fine couche d'une suspension de maïzena sur une lame de verre. Elle tend à craqueler en séchant (figure 2.6a). La pression de Laplace qui s'exerce sur les ménisques situés à l'interface eau/air entraîne en effet des contraintes de tension dans la matrice de grains de la suspension. Les films très minces (en dessous de h_c) sont stables. Juste au-dessus de l'épaisseur critique, des fissures nucléent sans se connecter. Dans les films minces, les motifs de nucléation sont souvent des étoiles à trois branches équidistantes formant des angles de 120° , parfois des segments linéaires (figure 2.6a). Pour des films plus épais, nous observons des structures connectées formant des polygones. Ces fissures apparaissent hiérarchiquement. De premières fissures nucléent et se propagent sur de grandes distances. Les suivantes se branchent perpendiculairement car l'énergie élastique dans la direction parallèle à la fissure est déjà relâchée. Cet effet rend compte de la nature tensorielle des contraintes résiduelles. Les nouvelles fissures interagissent avec les fissures précédentes sur des tailles de l'ordre de l'épaisseur du film (figure 2.6b)). L'origine de cette taille d'interaction est également due au confinement du relâchement de l'énergie élastique autour de la fissure. La vitesse de propagation des fissures est très grande devant celle de nucléation d'un nouveau segment et les réseaux de fissures se forment donc hiérarchiquement.

Les motifs finaux se rapprochent des réseaux urbains (Bohn *et al.* (2005); Barthélemy & Flammini (2008)) et présentent des analogies avec les réseaux de nervures des feuilles des plantes (Couder *et al.* (2002)). Cette observation a permis de suggérer un contrôle de la croissance des nervures par un champ de contrainte mécanique dans la feuille au cours de son développement plutôt qu'un contrôle par diffusion d'hormone traditionnellement invoquée par les biologistes. En imposant un front de séchage progressif, le sens de propagation des fractures est contrôlé et nous obtenons des allées de fissures parallèles relativement périodiques (Allain & Limat (1995); Shorlin *et al.* (2000)).

Dans le cas où la rupture devient tridimensionnelle, les motifs observés et leur description se complexifient. Pour des films de maïzena épais, nous voyons ainsi l'apparition d'organisations tridimensionnelles plus complexes et la formation de colonnes (Gauthier *et al.* (2007); Goehring *et al.* (2009)) rappelant des motifs géologiques (DeGraff & Aydin (1987)). Le couplage entre flexion, fissure, décollement et dynamique du front de séchage conduisent à des spirales de dessiccation (Leung *et al.* (2001); Lazarus & Pauchard (2011)). Dans le cas d'une déformation inhomogène dans l'épaisseur (par exemple lors du séchage d'un film par sa surface libre), le moment engendré entraîne la flexion du film. La libération de cette énergie de flexion peut-être un autre moteur de la décohésion avec le substrat.

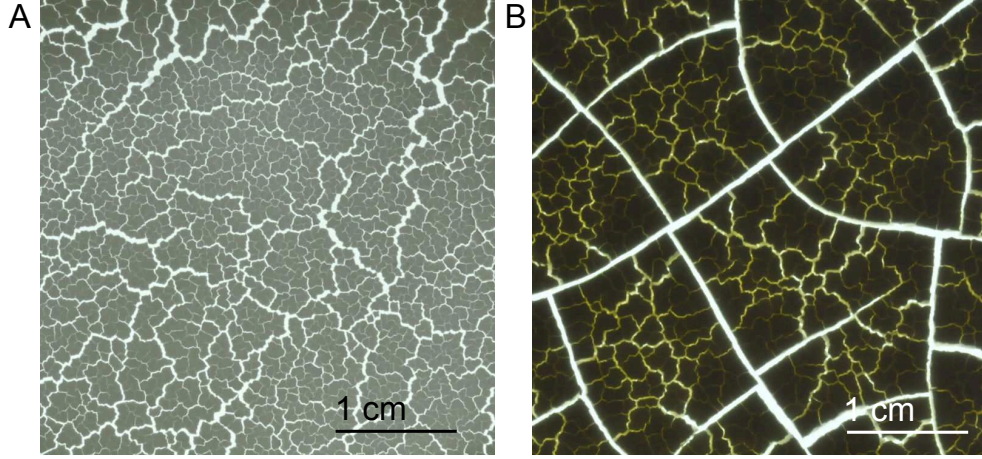


FIGURE 2.6: Fissures dans des couches d'épaisseur croissante de maïzena déposée sur un substrat rigide. (A) Un film fin ($h_f = 300 \mu\text{m}$) présente de nombreux points de nucléation en forme d'étoiles ou de segment linéaire. (B) Un film plus épais ($h_f = 2.7 \text{ mm}$) faïence hiérarchiquement.

Taux de restitution d'énergie pour une fissure isolée

Nous avons vu sur deux cas limites que les propriétés élastiques du film et du substrat sont fondamentales pour déterminer la taille caractéristique de relâchement de l'énergie élastique autour d'une fissure. Dans un cas intermédiaire où la fissure se propage dans un film déposé sur un substrat de module de Young fini, nous introduisons les paramètres de Dundur D_1 et D_2 (en déformation plane) pour décrire les désaccords de module de Young et de Poisson entre le film et le substrat (Hutchinson & Suo (1992)) :

$$D_1 = \frac{E_f/(1 - \nu_f^2) - E_s/(1 - \nu_s^2)}{E_f/(1 - \nu_f^2) + E_s/(1 - \nu_s^2)} \quad (2.7)$$

$$D_2 = \frac{\frac{1}{2} \mu_f(1 - 2\nu_s) - \mu_s(1 - 2\nu_f)}{\frac{1}{2} \mu_f(1 - 2\nu_s) + \mu_s(1 - 2\nu_f)}$$

où $\mu = E/(2(1 + \nu))$ est le module de cisaillement. $D_1 = -1$ pour un substrat infiniment rigide et s'annule lorsque les modules de Young du film et du substrat sont les mêmes. Si le substrat est infiniment complaisant ($D_1 = 1$), nous nous ramenons au cas d'une feuille mince sans substrat. En déformation plane, D_2 s'annule si les deux matériaux sont incompressibles ($\nu = 0.5$), et vaut le plus souvent $D_1/4$ (si $\nu_s = \nu_f = 0.33$ comme pour de nombreux métaux).

Pour calculer le taux de restitution d'énergie élastique pour une fissure dans le film, un outil important est la notion de régime permanent qui permet de s'affranchir du calcul des champs élastique tridimensionnels en pointe de fissure. Pour une fissure suffisamment longue, ces champs deviennent indépendants de la longueur de la fissure et sont simplement translatés avec la fissure.

Nous pouvons alors calculer le taux de restitution d'énergie en comparant l'énergie élastique contenue dans une tranche de longueur ds en amont et en aval du front de fissure où les champs de déformations sont bidimensionnels et en déformation plane. En régime permanent l'énergie relâchée lorsque la fissure avance d'une distance ds est $Gh_f ds$. Elle doit être égale à la différence d'énergie potentielle $d\mathcal{E}$ par unité d'avancée de la fissure et d'épaisseur :

$$G = \frac{d\mathcal{E}}{h_f ds} = \frac{1}{2h_f} \int_0^{h_f} \sigma(z) \delta(z) dz \quad (2.8)$$

où δ est le déplacement du à l'ouverture de la fissure.

Le taux de restitution d'énergie élastique en régime permanent s'écrit alors :

$$G = \frac{\gamma(D_1, D_2) \sigma^2 h_f}{E_f} \quad (2.9)$$

Le coefficient $\gamma(D_1, D_2) = \frac{\int_0^{h_f} \delta(z) dz}{2\sigma h_f^2 / E_f}$ est une fonction des constantes élastiques et des coefficients de Poisson du film et du substrat. En suivant Xia & Hutchinson (2000), introduisons la taille caractéristique ℓ sur laquelle le film se décharge autour d'une fissure, $\ell = \gamma(D_1, D_2) h_f / (1 - \nu_f^2)$. Cette longueur est de l'ordre de l'unité pour un substrat plus rigide que le film mais peut être beaucoup plus grande si le substrat est complaisant (figure 2.7).

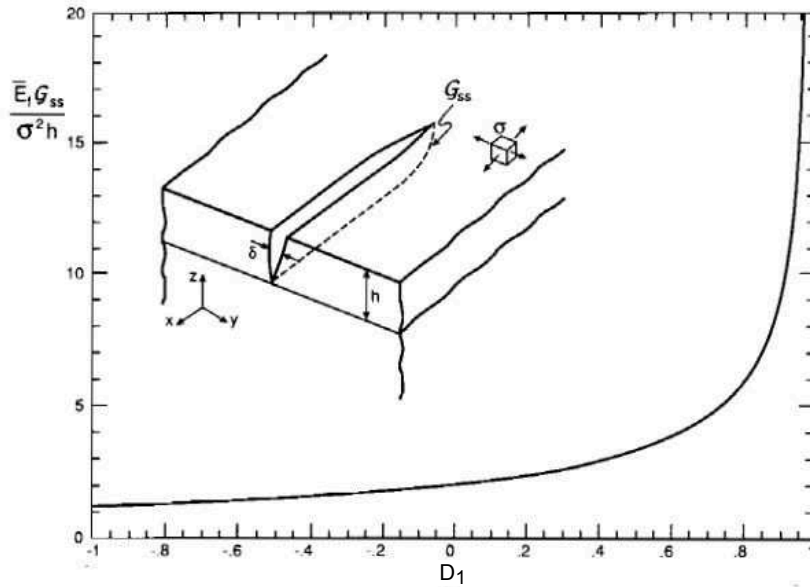


FIGURE 2.7: Influence du désaccord de module de Young (D_1) sur le taux de restitution d'énergie d'une fissure ($D_2 = 0.25D_1$, d'après Hutchinson & Suo (1992)).

Pour quelle longueur de fissure peut-on considérer que le taux de restitution d'énergie atteint le régime permanent ? La longueur dépend des propriétés élastiques de la couche et du substrat. Dans les cas limites examinés précédemment, le régime permanent est atteint très rapidement pour un substrat infiniment rigide, jamais atteint pour un substrat infiniment mou.

Notons qu'il n'y a pas de consensus dans la littérature sur la notation γ . Nous rappelons les définitions les plus courantes Z (dans Hutchinson & Suo (1992)), g (dans Beuth (1992)), γ et ℓ (dans Xia & Hutchinson (2000)). $\gamma = Z(1 - \nu_f^2) = \pi(1 - \nu_f^2)g/2 = (1 - \nu_f^2)\ell/h_f$. Dans la suite du manuscrit, nous utiliserons principalement γ et $\ell = \gamma h_f / (1 - \nu_f^2)$.

Remarque sur la dépendance de l'énergie relâchée avec le coefficient de Poisson du film

Comment expliquer la dépendance en $(1 - \nu_f^2)$ qui apparaît dans les définitions de Z et ℓ ? Considérons un film soumis une tension résiduelle isotrope σ_0 . La loi de Hooke nous donne la répartition des déformations :

$$\epsilon_{xx} = \frac{1}{E_f} [\sigma_{xx} - \nu_f \sigma_{yy} - \nu_f \sigma_{zz}] \quad (2.10)$$

Comme le film n'est pas contraint dans l'épaisseur, nous avons $\sigma_{zz} = 0$. Initialement, $\sigma_{xx} = \sigma_{yy} = \sigma_0$ donc $\sigma_0 = E_f \epsilon_0 / (1 - \nu_f)$. La densité surfacique d'énergie élastique contenue dans le film est donc :

$$e_{biaxiale} = 2 \frac{\sigma_0 \epsilon_0}{2} h_f = \frac{\sigma_0^2 (1 - \nu_f)}{E_f} h_f \quad (2.11)$$

Par la suite, nous dénommerons la densité d'énergie surfacique contenue dans le film $e = e_{biaxiale}$.

Lors de la propagation d'une fissure isolée dans la direction x , les contraintes sont principalement relâchées dans la direction y à cause des conditions aux limites car la fissure induit un déplacement uniquement dans la direction perpendiculaire à sa direction de propagation (figure 2.5A). En considérant l'étiement uniaxial de la couche selon x , estimons la dépendance de l'énergie relâchée lors de la propagation par effet Poisson. Nous imposons $\sigma_{yy} = \sigma_{zz} = 0$ et d'après la loi de Hooke $\epsilon_{xx} = \sigma_{xx} / E_f$. La densité d'énergie volumique est simplement $E_f \epsilon^2 / 2$. Comme $\epsilon_0 = \sigma_0 (1 - \nu_f) / E_f$, la densité d'énergie surfacique en traction uniaxiale vaut :

$$e_{uniaxiale} = \frac{\sigma_0^2 (1 - \nu_f)^2}{2 E_f} h_f \quad (2.12)$$

L'énergie relâchée par unité de surface lors de la propagation de la fissure isolée est donc la différence entre les deux états $e_{biaxiale} - e_{uniaxiale}$ soit :

$$e_{relachée} = \frac{\sigma_0^2}{2} \frac{(1 - \nu_f^2)}{E_f} h_f \quad (2.13)$$

Nous retrouvons la dépendance en $1 - \nu_f^2$ observée dans la définition de Z et ℓ . Nous nous attendons donc à ce que Z ne dépende que des contrastes de propriétés mécaniques entre le film et le substrat.

Critère de propagation.

Comparons le taux de restitution d'énergie à l'énergie nécessaire à la propagation de la fissure dans le film. Un film est stable si :

$$\frac{\gamma \sigma^2 h_f}{E_f} < G_c \quad (2.14)$$

À contrainte imposée, le film se fissure pour une épaisseur critique :

$$h_{cf} = \frac{G_c E_f}{\gamma(1 - \nu_f^2)\sigma^2} \quad (2.15)$$

2.4.2 Délaminage de film mince en tension.

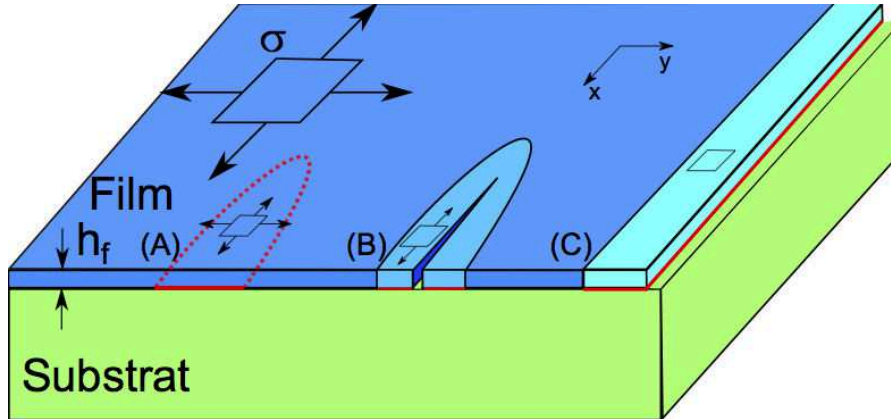


FIGURE 2.8: (A) Le front de délaminage (ligne rouge) ne peut se propager à partir d'un défaut à l'interface qui ne débouche pas en surface, car aucune énergie élastique n'est relâchée dans le film qui est toujours étiré biaxialement. (B) L'énergie est partiellement relâchée pour un front entourant un défaut (un bord libre). (C) À partir des bords de l'échantillon, l'énergie peut être complètement relâchée si il y a trois bords libres.

Nous nous intéressons maintenant à la propagation d'une fissure interfaciale entre le film en tension résiduelle σ_0 et le substrat. Si les contraintes résiduelles biaxiales σ sont suffisantes, un film mince d'épaisseur h_f peut délaminer de l'interface. Cependant cette délamination a besoin d'un bord libre pour que la propagation soit énergétiquement favorable. En effet, l'énergie

élastique contenue dans le film n'est pas relâchée pour une fissure d'interface se propageant sans bords libres et la propagation est donc impossible (figure 2.8A). Le front peut cependant se propager à partir d'une fissure pré-existante de taille finie (figure 2.8B) dans la couche ou à partir des bords de l'échantillon (figure 2.8C). Le front de délamination autour d'une fissure de longueur L est ainsi confiné autour de la fissure (figure 2.8) et l'énergie est relâchée principalement dans la direction perpendiculaire à la propagation y . Dans la direction de propagation x , les contraintes se relâchent de $\sigma_{xx} = (1 - \nu_f)\sigma_0$.

Considérons un front de délamination droit à partir d'un bord libre supposé infini. Nous pouvons écrire le taux de restitution d'énergie lors de la propagation en considérant la différence d'énergie élastique par unité de surface dans le matériau à l'avant et à l'arrière du front :

$$G = \gamma\left(\frac{a}{h_f}, D_1, D_2\right) \frac{\sigma^2 h_f}{E_f} \quad (2.16)$$

Le coefficient γ est une fonction des constantes élastiques et du coefficient de Poisson du film et du substrat et de la longueur de la fissure interfaciale a . Pour des longueurs de fissures suffisamment grandes (de quelques épaisseurs) et sous la condition que $E_f h_f \ll E_s h_s$, nous pouvons exprimer simplement le taux de restitution d'énergie en régime permanent G_{rp} .

Critère de délamination en régime permanent.

Dans la limite des longueurs de fissures suffisamment grandes (loin du bord libre), le taux de restitution d'énergie atteint un régime permanent G_{rp} indépendant de la longueur de la fissure a et des désaccords de propriétés élastiques du film et du substrat :

$$G_{rp} = \frac{1 - \nu_f^2}{2E_f} \sigma^2 h_f \quad (2.17)$$

L'énergie élastique relâchée dans le substrat est alors faible devant celle relâchée dans la couche et les variations d'énergie dans le substrat n'influent pas significativement sur G_{rp} . Le film se décolle lorsque le taux de restitution d'énergie équilibre l'énergie nécessaire à la propagation d'une fissure interfaciale : $G_{rp} = \Gamma$. Nous obtenons une contrainte critique de décollement :

$$\sigma_c = \sqrt{\frac{2E_f \Gamma}{(1 - \nu_f^2) h_f}} \quad (2.18)$$

À contrainte imposée, ce critère conduit à une épaisseur critique de délamination spontanée : $h_{cd} = 2(E_f \Gamma) / ((1 - \nu_f^2) \sigma^2)$. Cependant, avant que le front ne se propage, la délamination doit pouvoir s'amorcer à partir d'un bord libre (le bord de l'échantillon ou d'une fissure pré-existante dans le film). Par exemple,

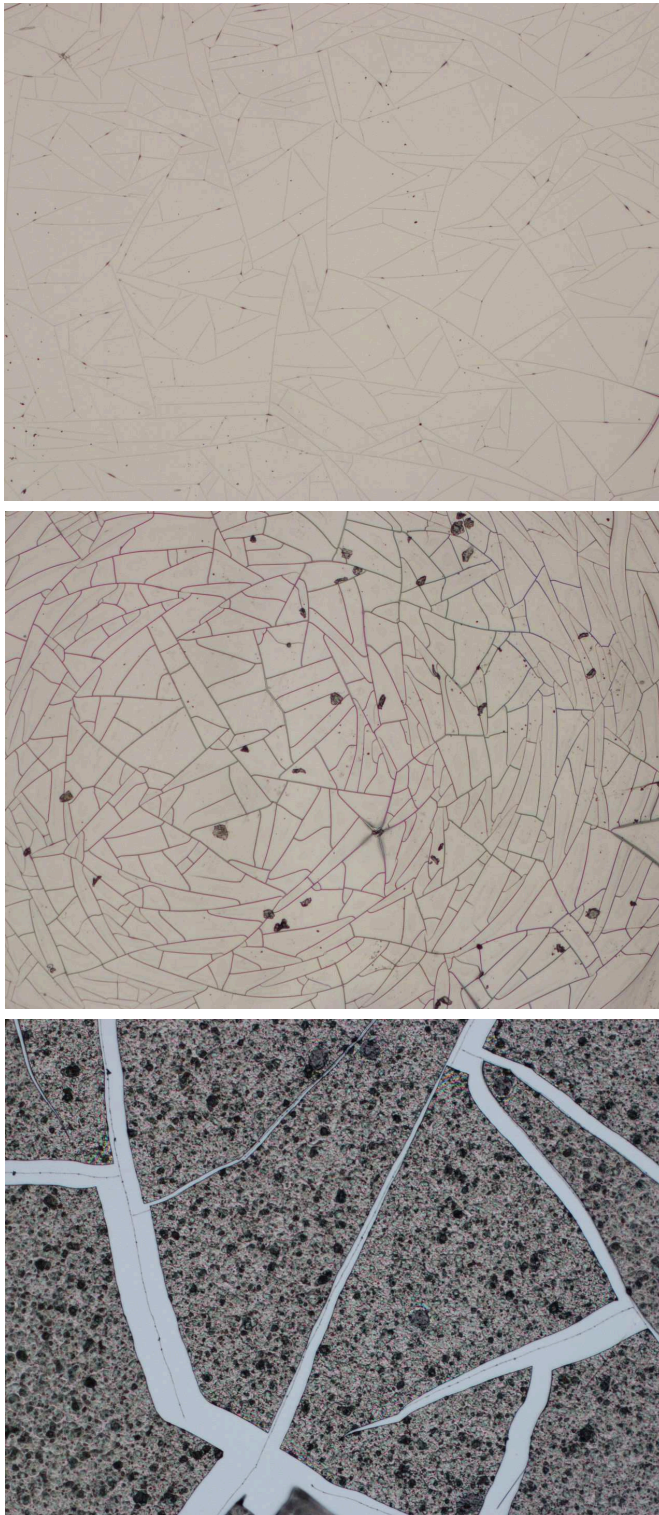


FIGURE 2.9: Un film de vernis déposé sur du verre faïence en séchant (A). En augmentant le chargement, le film délamine (B). Lorsque la délamination est complète, le film est complètement décollé et a relâché toutes les contraintes résiduelles. Les ouvertures inter-fissures sont alors très importantes (C).

dans un vernis déposé sur un substrat de verre, la couche faïence d'abord (figure 2.9A) puis commence à délaminer (figure 2.9B) pour des chargements croissants (au fur et à mesure du séchage).

Le plus souvent, la fracture dans le film et à l'interface n'interagissent pas. Le réseau de fractures se forment initialement, relâchant les contraintes sur une petite zone confinée autour des fissures. Lorsque l'énergie élastique relâchée excède l'énergie d'adhésion, les fragments se décollent et le phénomène de fissuration s'arrête lorsque toute l'énergie résiduelle est relâchée (figure 2.9C). Le délaminage influe sur la taille finale des îlots. Nous obtenons de plus petits fragments pour une couche dont l'adhésion avec le substrat est élevée. Les grandes ouvertures des lèvres de fissures observées à la fin du processus sont la signature que les déformations résiduelles importantes stockées lors du séchage ont été complètement relâchées.

Fissure d'interface : mixité modale.

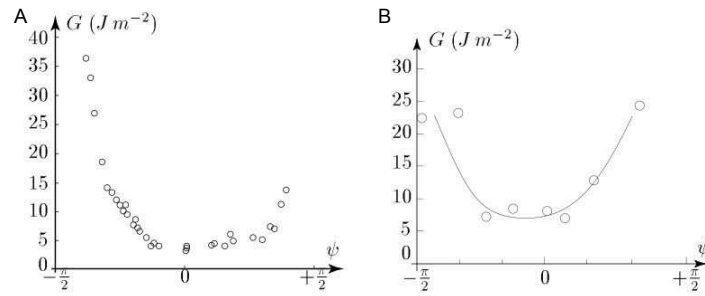


FIGURE 2.10: Energie interfaciale en fonction de la mixité modale mesurée par Chai & Liechti (1992) pour une interface verre/epoxy (A) et par Wang (1995) pour une interface cuivre/aluminium (B). La figure est issue de Audoly (2000b).

Dans l'équation 2.18 la valeur de l'énergie d'interface Γ dépend du mode de chargement de la fissure. Pour une interface faible, la description de la propagation d'une fissure d'interface peut sembler plus simple que pour une fissure qui se propage dans un solide homogène, car la direction de propagation est imposée (la fissure suit l'interface faible). Cette condition entraîne en fait une difficulté supplémentaire car la valeur de l'énergie interfaciale dépend alors du mode de chargement du front de fissure. En plus de l'énergie de surface nécessaire à la propagation en mode d'ouverture (analogue à une énergie de surface), l'énergie dissipée lors de la propagation augmente en raison de la dissipation par friction sur les lèvres de la fissure (Evans & Hutchinson (1989); Newby & Chaudhury (1998); Audoly (2000a)) ou du changement de la forme de la zone plastique en tête de fissure (Tvergaard & Hutchinson (1993)). Les modes I et II coexistent en tête de fissure.

L'énergie de l'interface $\Gamma(\psi)$ dépend alors du rapport des modes $\tan \psi = K_{II}/K_I$ où K_I et K_{II} décrivent la singularité des contraintes en pointe de fissure associée aux modes I et II (équation 2.1). Dans un milieu homogène, la fracture se propage pour $K_{II} = 0$ (soit $\psi = 0$). À une interface, le front de décollement se propage à une valeur fixée de mixité modale et nous pouvons estimer les facteurs d'intensité des contraintes correspondant aux deux modes qui sont donnés par (pour $D_2 = 0$) : $K_I = \sigma \sqrt{h_f/2} \cos \psi$ et $K_{II} = \sigma \sqrt{h_f/2} \sin \psi$. La relation entre la dépendance de Γ avec ψ et les propriétés microscopiques des matériaux en pointe de fissure est toujours une question ouverte mais Hutchinson et Suo ont proposé une formule empirique qui correspond aux résultats expérimentaux obtenus sur des interfaces verre/epoxy par Chai & Liechti (1992) et Bank-Sills *et al.* (1999) ou sur une interface cuivre/aluminium par Wang (1995) : $\Gamma = \Gamma_1(1 + (1 - \lambda) \tan^2(\psi))$ où λ est un paramètre d'ajustement déterminé expérimentalement et Γ_1 est l'énergie d'interface en mode I. Si D_2 est non nul, nous ne pouvons plus simplement écrire $\sigma \sim K/\sqrt{2\pi r}$, et il faut définir des facteurs d'intensité des contraintes d'ouverture σ_{22} et de cisaillement σ_{12} dans le plan complexe $\sigma_{11} + \sigma_{12}(r, \theta = 0) = Kr^{i\epsilon}/\sqrt{2\pi r}$ où ϵ est la constante biélastique dépendant de D_2 et s'annulant pour $D_2 = 0$. Ces champs oscillent en pointe de fissure. Par la suite, nous nous affranchirons de cette difficulté en considérant que D_2 est nul (Hutchinson & Suo (1992)).

Près du bord libre.

Le taux de restitution d'énergie près d'un bord libre est inférieur au taux de restitution en régime permanent. La taille de régularisation est différente pour une fissure nucléant au bord du film et pour une nucléation à partir d'un défaut dans le film (Yu *et al.* (2001)). Elle dépend des propriétés élastiques du film et du substrat. Si la longueur de fissure nécessaire pour retrouver le régime permanent est très petite à partir d'un défaut (moins d'une épaisseur), la barrière de nucléation pour le bord du film peut être beaucoup plus grande. Si le module de Young du film et du substrat sont égaux ($D_1 = 0$), il faut une taille de délamination excédant 10 fois l'épaisseur pour atteindre $0.95G_{rp}$. La barrière de décohésion est donc importante sur les bords des échantillons et ces bords sont souvent stables alors qu'elle est négligeable pour des défauts dans la couche. Nous chercherons à caractériser la forme du front de délamination autour d'un défaut rectiligne en régime permanent.

Délaminage extensif : forme du front de décollement.

Considérons maintenant non plus un bord libre infini, mais une fissure rectiligne de longueur L dans le film mince (figure 2.11A). Si $\sigma > \sigma_c$, la décohésion a lieu mais se trouve forcément limitée à une taille caractéristique de l'ordre du défaut L . En effet au-delà de cette taille, l'influence du bord libre de la fissure dans le film s'estompe et aucune énergie élastique supplémentaire ne

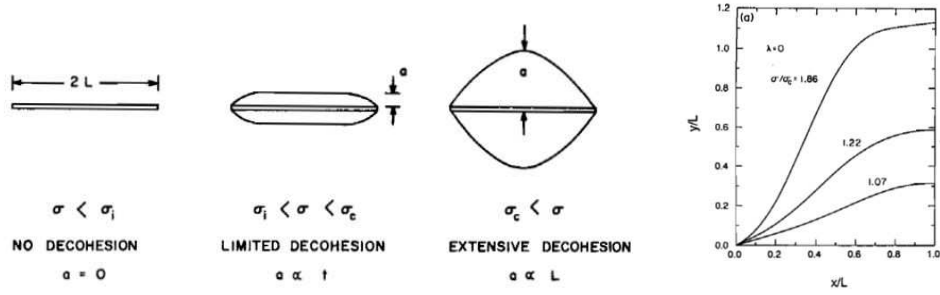


FIGURE 2.11: (A) Forme du front de décollement autour d'une fissure de longueur L en fonction du chargement σ . (B) La forme du front de délamination a été déterminé par Jensen *et al.* (1990) duquel est issue la figure.

peut-être relâchée par un décollement même si l'énergie interfaciale est nulle. La forme du front de décollement autour d'un défaut renseigne sur le rapport du taux de restitution d'énergie à l'énergie d'interface. Nous nous servons de cette forme comme d'une méthode de mesure originale de l'énergie d'adhésion dans nos films (détaillée dans la section 3.8.3). Jensen *et al.* (1990) ont déterminé la forme du front en fonction du chargement, de l'énergie d'interface et de la mixité modale du front. Ils déterminent les contraintes normales et tangentielles sur le front de délamination et imposent une mixité modale ψ constante le long du front. La forme ne dépend alors plus que du chargement et du mode III s'exerçant sur le front (dans la figure 2.11B, nous représentons la forme du front lorsque le mode III est nul). Pour une contrainte inférieure à σ_c , nous ne nous attendons pas à la propagation du front de délamination à partir de ce bord libre. Un délaminage diffus, confiné sur une petite taille autour de la fissure, peut cependant se produire pour une contrainte inférieure (nommée σ_i).

Délaminage diffus

Pour une contrainte plus faible que σ_c , la décohésion peut se produire si le taux de restitution d'énergie est plus important pour des petites largeurs du front de fissures a . Nous parlons de délaminage diffus. La forme du taux de restitution d'énergie en fonction de la longueur de la fissure dépend des propriétés élastiques de la couche et du substrat (figure 2.12 déterminé par Mei *et al.* (2007)). Lorsque la rigidité du film est de l'ordre ou supérieure à celle du substrat ($D_1 > -0.5$), le taux de restitution d'énergie est plus important pour des petites largeurs du front de fissures. Un front de délaminage diffus autour des défauts, confiné sur une taille de quelques épaisseurs, peut alors se propager si l'énergie d'interface Γ est supérieure au taux de restitution d'énergie en régime permanent mais inférieure au taux de restitution d'énergie lorsque la largeur du front de décollements a tend vers zéro. La largeur du front

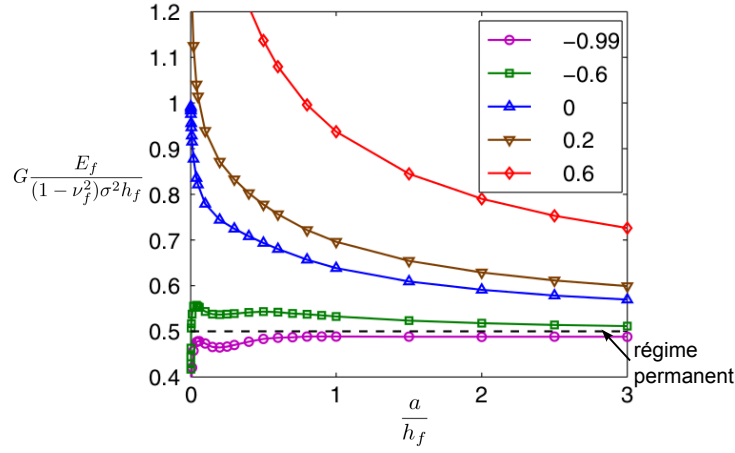


FIGURE 2.12: Taux de restitution d'énergie élastique d'une fissure d'interface en fonction de la largeur du front de délaminage a normalisée par l'épaisseur du film h_f (d'après Mei *et al.* (2007)). Les différentes couleurs correspondent à différents rapport de modules élastiques entre le film et le substrat caractérisés par le premier coefficient de Dundur D_1 . Lorsque le film et le substrat ont la même rigidité ($D_1 = 0$ en bleu), le taux de restitution d'énergie est plus importante pour des faibles longueurs de fissure d'interface qu'en régime permanent (en pointillé) permettant la propagation d'un front de délaminage diffus.

de délaminage a est dans ce cas une fonction de l'épaisseur du film h_f et est indépendante de la longueur de la fissure L . Notons que dans tous les cas examinés, la largeur du front pour parvenir à la propagation en régime permanent est très petite (de l'ordre de quelques épaisseurs du film).

2.4.3 Conclusion pour les films en tension : critère de rupture et de délaminage.

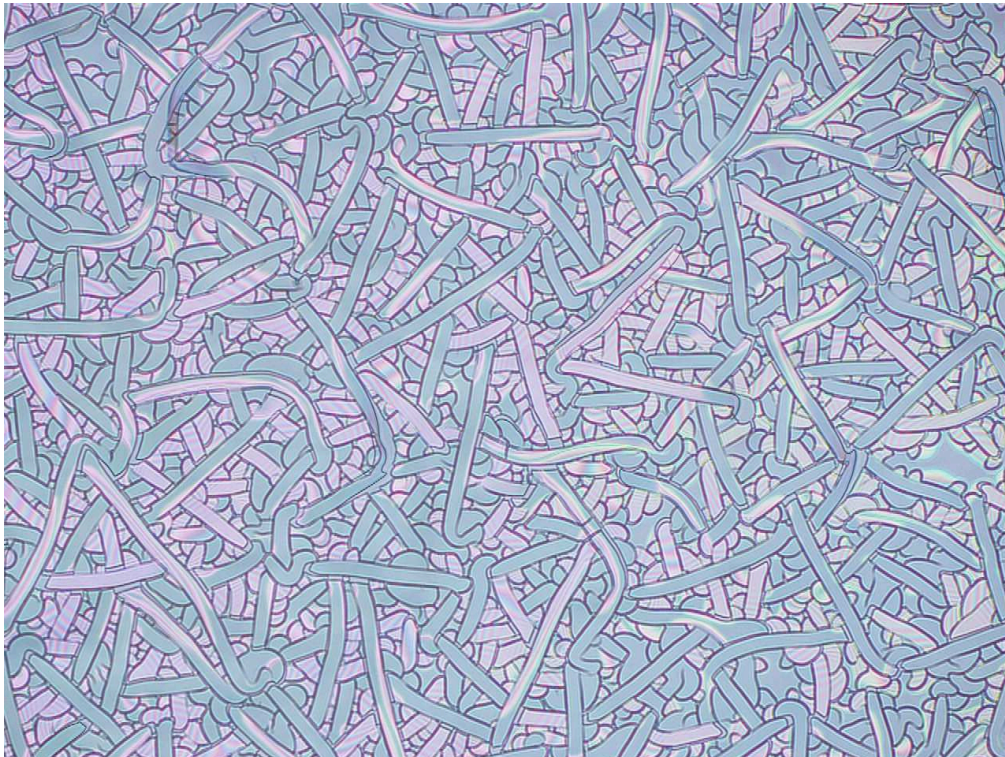
Nous savons maintenant prédire les conditions énergétiques permettant la propagation de fissures isolées dans un film mince (équation 2.14) et les conditions d'amorçage et de propagation d'un front de délaminage (équation 2.18). Du point de vue du design industriel, nous pourrions penser diminuer la taille des défauts afin d'empêcher la nucléation de fissures. Les dimensions latérales d'un film étant beaucoup plus étendues que l'épaisseur du film, il est en pratique peu vraisemblable d'éviter la présence de défauts de l'ordre de l'épaisseur du film qui sont suffisant pour amorcer la fissure. La condition de l'équation 2.14 est donc une règle nécessaire pour la stabilité classiquement utilisée dans l'industrie (Suo (2003)). Un film mince peut se décoller autour d'un défaut, à partir d'une fissure qui s'est déjà propagée précédemment ou à partir des bords de l'échantillon. Contrairement à la propagation de fissures

dans le film, la condition de l'équation 2.18 est *a priori* moins nécessaire pour la stabilité du film que celle imposée pour la fracture lors du design des films minces car le décollement autour d'un défaut est confiné sur une taille caractéristique de l'ordre du défaut. Dans les chapitres suivants, nous allons montrer qu'un nouveau mode de propagation couplant rupture et délaminage change le critère de stabilité couramment utilisé pour le design des couches minces dans l'industrie.

CHAPITRE

3

Coopération entre fracture et
dé laminage : duos, spirales et
croissants



Ruine d'un film de MTEOS par un mode rupture-délaminage collaboratif.

Les travaux présentés dans les chapitres 2 et 3 ont été effectués en collaboration avec Francisco Melo (Universidad de Santiago de Chile)

3.1 Introduction : des motifs de fragmentation inhabituels

3.1.1 Deux expériences étonnantes

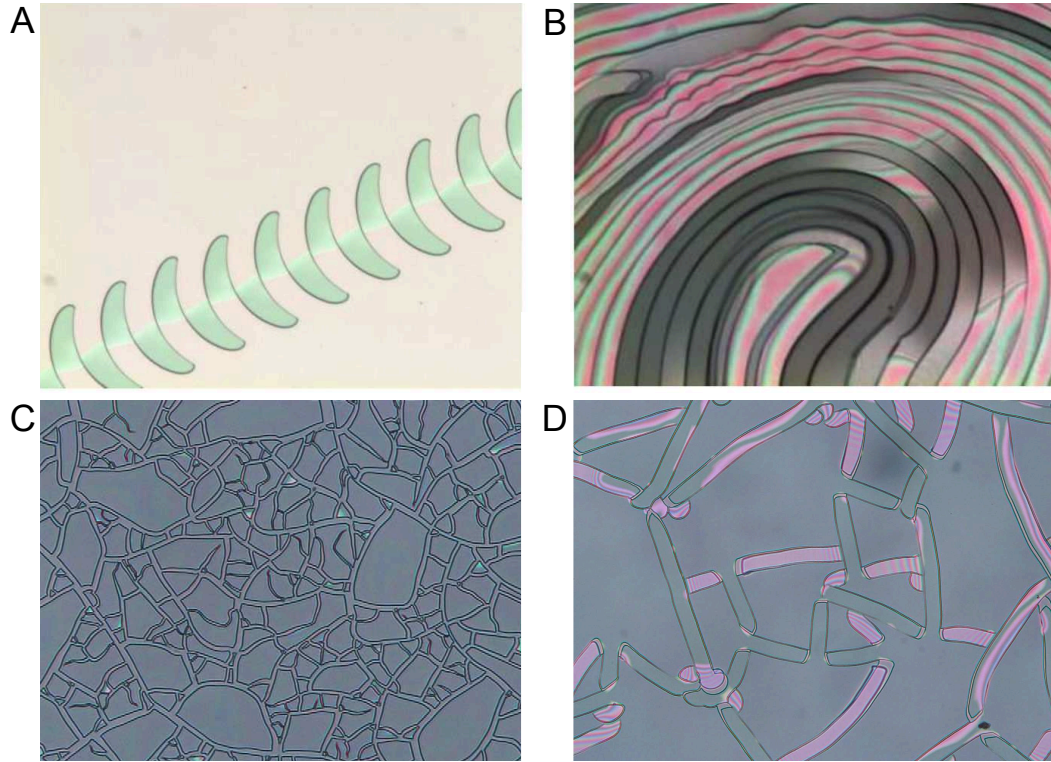


FIGURE 3.1: (A) Fissures en allées de croissants et (B) circuits parallèles de pas réguliers dans des couches de spin on glass (crédits Mélanie Lebental (2007)). Un exemple de transition entre motifs de propagation de fissures habituelles et propagation étonnante dans une couche de MTEOS : (C) Une couche de $1\ \mu\text{m}$ déposée sur du verre faïence puis délamine dans un second temps sans interaction entre fissure et délaminage. (D) Pour des épaisseurs inférieures, nous observons de longues bandes parallèles. Les interférences lumineuses visibles sur les clichés sont une signature de délaminage du film.

Fracture dans des miroirs pour cavité laser

Lors de sa thèse de doctorat consacrée à l'étude du chaos quantique, Mélanie Lebental (2007) a observé des motifs de rupture étonnants dans des couches de spin on glass (SOG) recouvrant des miroirs de cavités laser. En essayant d'optimiser l'épaisseur de la couche comprise entre le substrat de silicium et un milieu à gain, elle a observé que pour des épaisseurs de films importantes, la couche se fissure et forme des motifs d'allées de croissants très régulières (figure 3.1A) ou des rangées de fissures se suivant à une distance constante (figure 3.1B). Frappée par la ressemblance des ces motifs oscillants avec ceux observés par Benoît Roman dans des feuilles minces (Audoly *et al.* (2005)), elle lui fait part de cette découverte. Les deux phénomènes de fissuration s'avèrent en fait très différents même si les motifs des fissures se ressemblent.

Dans du MTEOS

Des motifs similaires ont également été observés par Emmanuel Garre à Saint Gobain Recherche après un dépôt d'une couche de méthyl triéthoxysilane (MTEOS) sur un substrat de verre : ces films sont obtenus par voie sol-gel à partir d'une solution d'organosilicate. La couche est soumise à une forte rétraction lors de la réaction de condensation (Brinker & Scherer (1990)). Cette couche étant solidaire du substrat rigide, la diminution de volume entraîne des contraintes résiduelles de traction. Habituellement, des fissures se propagent dans le film puis la couche finit par se détacher du substrat (Atkinson & Guppy (1991)), ce qui permet de relâcher complètement les contraintes résiduelles (comme nous l'avons vu dans le chapitre 2.4). Nous observons de très grandes ouvertures entre les fragments qui correspondent au changement de volume lors du retour à l'état non contraint (figure 3.1C). Nous pouvons estimer la déformation stockée à quelques % en observant l'ouverture interfissures. Parfois, lorsque l'adhésion de la couche avec le substrat est faible, les motifs de propagation sont plus étonnants (figure d'introduction du chapitre). Nous observons l'apparition de longues bandes qui délaminent du substrat (figure 3.1D). La largeur de ces bandes est très robuste. Toujours à Saint-Gobain, des motifs en spirales sont observés lors de la fonctionnalisation de substrats flexibles par dépôt de couches minces pour lesquels l'adhésion entre le film et le substrat est souvent assez faible.

3.1.2 Dans des couches d'intérêt industriels

À la suite d'une longue recherche bibliographique, nous avons trouvé quelques cas où de tels motifs de fissures sont rapportés, dans des journaux techniques, souvent dans un contexte industriel. Ainsi, nous observons la propagation de ces fissures dans des piles à combustibles (Bozzini *et al.* (2012), figure 3.2 A), sur des revêtements opto-électroniques (Bursíková *et al.* (2006); Leb-

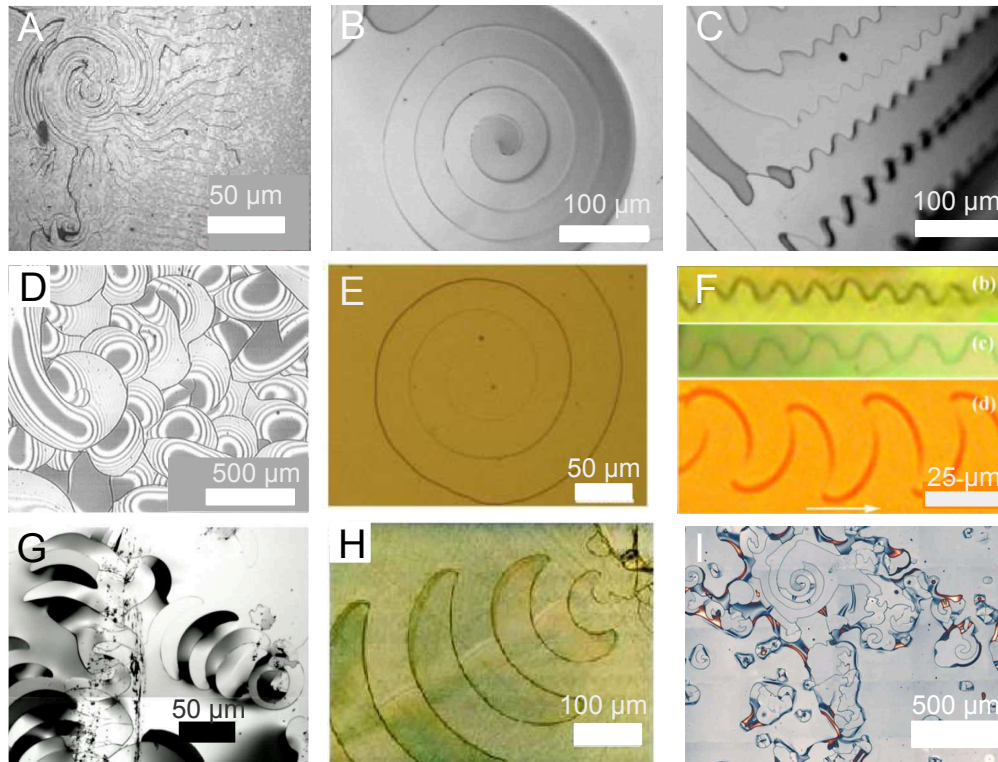


FIGURE 3.2: Des fissures en croissants ou en spirales ont été observées dans des systèmes très divers à plusieurs échelles. Dans un dépôt de composite électrolyte d'une pile à combustible (A dans Bozzini *et al.* (2012)), dans des couches métalliques de molybdène et silicium (B et C dans Meyer *et al.* (2004) et G dans Kravchenko (2008)), dans des films de silice (D dans Malzbender & de With (2000), E et H dans Sendova & Willis (2003), F dans Wan *et al.* (2009)) dans des films de NiAl attaqués à l'acide fluorhydrique (I, MVC 2009 Winners Gallery, Jane Howell (Grad student in Penn State)).

tal (2007), figure 3.1 A) ou dans des technologies de revêtements de surfaces (Malzbender & de With (2000), figure 3.2 D).

Dans la plupart des cas, les auteurs ne s'intéressent pas à la spécificité des motifs de propagation de fissures et notent seulement la ruine de la couche. Il y a une dizaine d'année Sendova & Willis (2003) se sont intéressés à ces motifs de fissures dans des couches sol-gel d'organosilicate d'un micromètre d'épaisseur déposées par spin-coating sur des substrats en verre (figure 3.2 E et H). Des motifs de fissures en spirales et en croissants ont ensuite été observés dans des matériaux proches (Wu *et al.* (2013)) déposés sur des substrats de silicium. Les contraintes sont ici induites par la condensation sol-gel, et la propagation est parfois aidée par des contraintes d'origine thermique (en jouant sur la différence de coefficient de dilatation thermique entre le film et le substrat) en

chauffant localement l'échantillon (Wan *et al.* (2009), figure 3.1F). Des fissures en spirales et croissants ont été remarquées par Meyer *et al.* (2004) sur des multicouches métalliques de molybdène et de silicium déposées par pulvérisation cathodique magnétron sur des substrats de silicium (figure 3.2 B et C). L'épaisseur totale de la couche atteint 500 nm. Le chargement complexe auquel l'échantillon est soumis (rampe de température à 450°C et essai de flexion trois-points) rend l'observation et l'estimation des contraintes résiduelles difficile. Le même dispositif expérimental est utilisé par Kravchenko (2008) dans sa thèse de master (figure 3.2 G). Les motifs sont également observés dans des multicouches métalliques de fer (Fe) et d'or (Au) déposées par évaporation sur des substrats de nitrure de silicium (Si_3N_4). La propagation a lieu lors du dépôt d'un composite électrolyte contenant un catalyseur au platine (Bozzini *et al.* (2012), figure 3.2 A).

3.1.3 Dans des expériences macroscopiques

Nous cherchons à reproduire ces motifs dans différents systèmes macroscopiques afin de dégager les ingrédients physiques nécessaires à la propagation de ce mode de rupture. Déposons une couche de vernis craqueleur de 40 μm d'épaisseur sur un substrat de verre. Nous observons la propagation de longues bandes parallèles (figure 3.3A). Le vernis non filtré présente de nombreux points de nucléation et les motifs sont peu développés. Après filtrage, nous observons la propagation en allées de croissants (figure 3.3B) ou d'une bande parallèle convergente reliée par un front de délamination (figure 3.3C). Ces films présentent cependant un désavantage pour étudier le mode de propagation : les contraintes résiduelles de séchage auxquelles ils sont soumis évoluent dans le temps.

Nous déposons une fine couche de peinture (d'épaisseur $h_f = 100\mu m$ et de module de Young $E_f = 1GPa$) sur un substrat de polymère fluoré. Les contraintes de séchage de la peinture n'étant pas suffisantes pour que la fissure se propage, nous augmentons les contraintes de traction biaxiale imposées au film en tendant le substrat sur un tambour. Lorsque l'on augmente la déformation imposée, nous observons parfois la propagation de spirales (figure 3.3D). Les manipulations sont rendues complexes par la charge élevée qu'il faut appliquer sur le film pour obtenir une déformation biaxiale.

Pour étudier proprement le phénomène de propagation, nous cherchons donc un système caractérisé par :

- une énergie d'adhésion faible entre la couche et le substrat
- des contraintes résiduelles bien caractérisées et indépendantes du temps
- un film fragile (c'est-à-dire présentant une zone plastique petite par rapport à la largeur caractéristique des motifs)
- un film présentant peu de points de nucléation

En pratique, les deux derniers points ne sont pas faciles à obtenir simultanément.

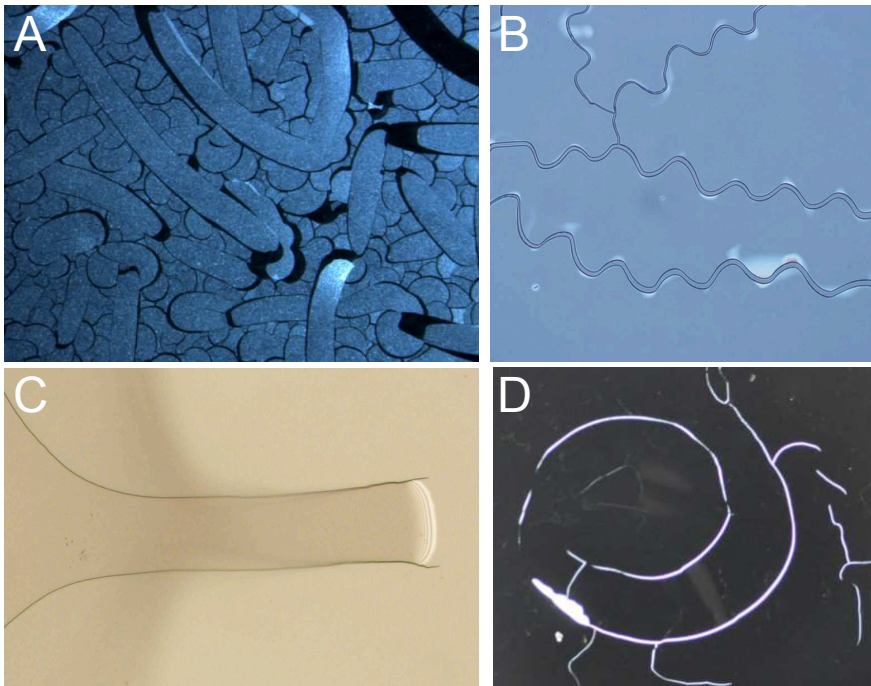


FIGURE 3.3: (A) Des fissures formant de longues bandes parallèles se propagent dans un film de vernis craqueleur de $40\ \mu\text{m}$ d'épaisseur. La complexité des motifs de fissures observés est diminuée drastiquement en filtrant le vernis. Nous observons alors la propagation de motifs sinueux formant des croissants (B) et de deux fissures convergentes reliées par un front de délamination (C). (D) Des motifs en forme de spirale sont observés sur une couche de peinture d'une centaine de microns déposée sur un substrat flexible en polymère fluoré.

3.1.4 Des caractéristiques communes surprenantes et inexplicables.

Bien que les matériaux, les épaisseurs des couches minces et les méthodes de déposition soient très variés, les motifs observés présentent des géométries très similaires (allées oscillantes, spirales, languette). Ils partagent des caractéristiques frappantes (régularité géométrique, robustesse) qui sont inhabituelles en mécanique de la rupture. Une propriété étonnante est la distance d'interaction entre fissures (typiquement 30 fois l'épaisseur) particulièrement grande devant la distance habituelle d'interaction de quelques épaisseurs due au confinement de l'énergie élastique autour des fissures. Tous ces systèmes sont caractérisés par une faible adhésion entre la couche et le substrat et nous observons un décollement autour de la zone de propagation des fissures. Peut-on affirmer que le même mécanisme est à l'œuvre dans des systèmes aussi divers ? Qu'est ce qui les différencie des situations habituelles de propagation

de fissures isolées hiérarchiques en “boue séchée” ?

Quelques études ont proposé des pistes de compréhension du phénomène : Sendova & Willis (2003) et Meyer *et al.* (2004) ont noté que les films minces se décolle du substrat autour de la fissure. Comme les observations sont faites après la propagation, ils n’ont cependant pas pu déterminer si la délamination a lieu en même temps que la fissuration ou si le décollement lui est postérieur. Kravchenko (2008) observe la propagation des fissures à la caméra rapide et note que le front accompagne la fissuration. Cependant, la vitesse de la fissure est importante et il ne peut déterminer la propagation du front de délamination pendant la propagation de la fissure avec une résolution suffisante. Sendova & Willis (2003) proposent un effet de la courbure de la couche lors du décollement par analogie avec les spirales de dessiccation observée par Leung *et al.* (2001). Meyer *et al.* (2004) notent la similarité entre la propagation des croissants et la propagation des cloques en forme de cordons de téléphone (Moon *et al.* (2002)). Wan *et al.* (2009) évoquent un effet de la délamination de la couche mais s’intéressent au retrait des fissures pour essayer de justifier la forme des croissants. Cependant aucune étude précise du mécanisme de propagation n’a été développée et les ingrédients physiques responsables de ce mode de rupture n’ont pas encore été identifiés.

Dans ce chapitre, nous proposerons la première description de ce mode de propagation :

- d’un point de vue expérimental en faisant varier l’énergie d’adhésion entre la couche et le substrat et en observant le phénomène de fissuration en temps réel
- d’un point de vue théorique en proposant un modèle qui explique ce nouveau mode de propagation

En particulier nous chercherons à :

- comprendre sous quelle condition nous observons la propagation de tels motifs de rupture
- déterminer le mécanisme fixant la taille d’interaction entre fissures et la sélection des motifs observés

Nous commencerons par présenter les principales observations expérimentales (section 3.2). Pouvons-nous prédire les conditions de propagation (en appliquant le critère de Griffith) et la sélection de la taille (en utilisant le critère du maximum du taux de restitution d’énergie élastique) des duos de fissures (section 3.3) ? Comment étendre cette description au cas des fissures suiveuses (spirales ou des allées de croissants (section 3.4)) ? Comment trois fissures interagissent-elles (section 3.6) ? Sous quelles conditions observons-nous la propagation de ces motifs (section 3.5) ?

3.2 Observations expérimentales

Nous choisissons d'étudier les motifs de fissures dans un matériau modèle pour nous affranchir des dépendances temporelles du séchage observées dans les suspensions colloïdales ou dans des couches de vernis. Les couches déposées par voie sol-gel sont un bon candidat car elles présentent une déformation résiduelle importante après dépôt. Les contraintes dans la couche sont ainsi fixées et aisément déterminables. Les expériences contrôlées sont réalisées à partir d'une solution commerciale d'organosilicate (SOG spin-on-glass, Accuglass T-12B, Honeywell). Le SOG est un matériau hybride organique-inorganique qui consiste en un réseau de dioxyde de silice amorphe où certaines des liaisons oxygénées ont été remplacées par des groupes hydrogène (-H), des groupes hydroxyl (-OH) ou des groupes hydrocarburés (-CH₃, -CH₂CH₃...). De tels films sont utilisés pour leurs propriétés optiques (Lebental (2007)), en micro-électronique (Morgen *et al.* (2000)), dans des applications biomédicales (Pryce L. *et al.* (2000)) ou environnementales (Stein *et al.* (2000)).

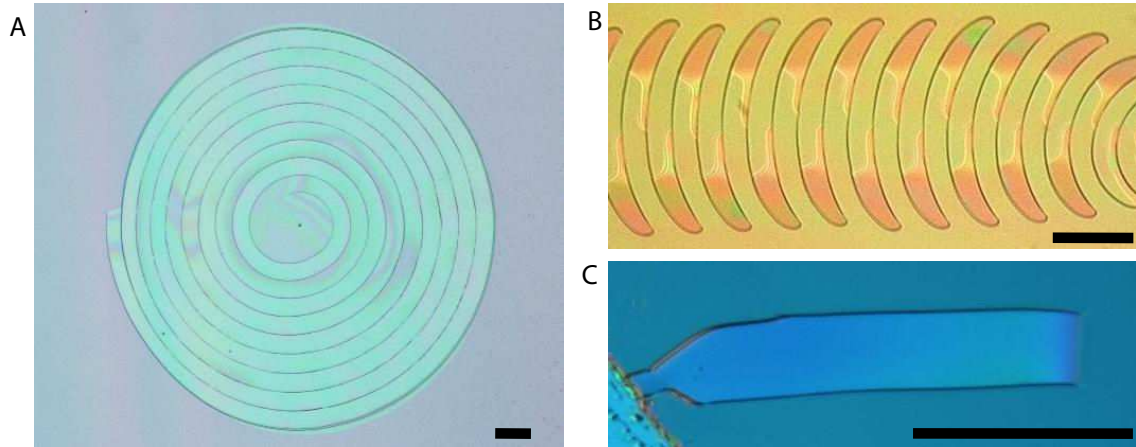


FIGURE 3.4: Motifs observés dans des films de SOG. (A) Spirale, (B) allées de croissant et (C) duo de fissures.

La solution de spin-on-glass est optimisée pour éviter les points de nucléation de fissures, ce qui nous permet d'observer des motifs de fissures bien développés et isolés les uns des autres. Nous déposons par spin-coating des couches d'épaisseur micrométrique de spin-on-glass sur des substrats de silicium (vitesse de rotation de 500 à 1200 tour/min pendant 15 à 25 secondes). La couche liquide est ensuite placée dans une étuve à 200°C pendant 2 heures. Le solvant s'évapore permettant à la réaction de condensation sol-gel d'avoir lieu. L'adhésion avec le substrat est contrôlée en déposant une première couche de sol-gel dont nous pouvons faire varier la composition chimique pour obtenir des énergies de rupture interfaciale différentes. En contrôlant soigneusement l'interface, nous obtenons des motifs isolés et bien développés : spirale (fi-

gure 3.4A), allées de croissants (figure 3.4B) ou duos de fissures (figure 3.4C).

3.2.1 Récapitulatif des propriétés du système expérimental.

Nous présentons les propriétés du système expérimental et les techniques de caractérisation du matériau, du chargement et des énergies de rupture en Annexe de ce chapitre (section 3.8). Ce travail de caractérisation est difficile en raison de la faible épaisseur de la couche. Pour mesurer l'énergie d'adhésion, nous avons utilisé une méthode nouvelle et originale basée sur l'observation de la zone délaminée autour d'une fissure (en comparant avec l'étude théorique de Jensen *et al.* (1990)). Nous récapitulons dans cette section les informations importantes (Tableau 3.1) pour le lecteur qui voudrait s'affranchir des techniques de caractérisation mises en œuvre. Nous déposons une couche de spin

E_f	$4 \pm 3 \text{ GPa}$
ν_f	0.25
h_f	$[0.6 - 10] \mu\text{m}$
Γ_0	$[0.3 - 1.3] \text{ N/m}$
G_c	$1.5 \pm 0.2 \text{ N/m}$
σ_0	55 MPa
ϵ_0	1.4 %

Tableau 3.1: Propriétés élastiques et de rupture d'un film de SOG.

on glass ($E_f = 4 \pm 3 \text{ GPa}$, $\nu_f = 0.25$) fragile d'épaisseur variable (600 nm à 10 μm) sur un wafer de silium ($E_s = 169 \text{ GPa}$, $\nu_s = 0.36$). Nous mesurons alors une adhésion à vitesse nulle $\Gamma_0 = 1.3 \text{ N/m}$. L'énergie d'adhésion augmente avec la vitesse de propagation du front de délamination.

Pour varier l'énergie d'adhésion entre le film et le substrat, nous déposons une première couche d'épaisseur 600 nm à 1.2 μm de spin on glass ($\Gamma_0 = 0.55$ ou 0.6 N/m), de spin on glass dégradé 20 mois ($\Gamma_0 = 0.3 \text{ N/m}$), de MTEOS ($\Gamma_0 = 0.45 \text{ N/m}$), de TEOS ($\Gamma_0 = 0.8 \text{ N/m}$) ou une couche atomique de silane méthylé ($\Gamma_0 = 0.8 \text{ N/m}$). L'énergie de fissure du film est un peu supérieure à toutes ces énergies d'adhésion ($G_c = 1.5 \pm 0.2 \text{ N/m}$).

Les contraintes résiduelles ($\sigma_0 = 55 \text{ MPa}$) dans la couche sont homogènes et isotropes et correspondent à une déformation résiduelle de 1.4 %

3.2.2 Duos et fissures suiveuses : un mode collaboratif délaminage/fissure

En variant l'épaisseur du film et l'énergie d'adhésion entre le film et le substrat, nous observons la propagation de fissures formant de longues bandes parallèles (duo de fissures figure 3.5), des spirales d'Archimède (figure 3.6),

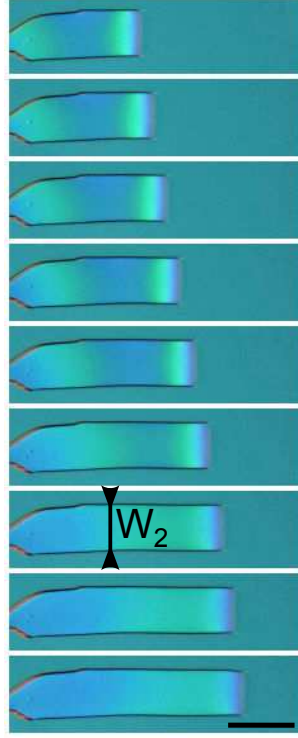


FIGURE 3.5: Propagation d’un “duo de fissures” dans un film de spin-on-glass, déposé sur un wafer de silicium ($h_f = 1.4 \mu\text{m}$ $\Gamma = 0.55 \text{ N/m}$, échelle $50 \mu\text{m}$). La longueur d’interaction W_2 est définie comme la largeur du front de délamination. À partir d’un point d’amorçage, les fissures, reliées par un front de délamination, commencent par diverger puis se fixent à une taille stable. Les photos sont prises à un pas de temps constant de 1 s. La vitesse de propagation des fissures est constante et lente devant la vitesse des ondes sonores. La propagation est donc quasi-statique.

des allées régulières de croissants (figure 3.7) ou des rangées de fissures parallèles (figure 3.8). La propagation des fissures se déroule sur des échelles de temps qui nous permettent de suivre facilement le phénomène en temps réel par microscopie optique en réflexion (caméra à 24 images/s). L’apparition de franges d’interférences entre le film et le substrat indiquent que le film délamine au cours de la fissuration. Deux temps caractéristiques très différents apparaissent cependant pour la propagation des grands croissants (Fig. 3.7). Le processus commence par une phase de propagation rapide du mode collaboratif jusqu’à l’arrêt de la fissure. Un front de délamination croît ensuite lentement à partir du bord de la fissure précédente. Au-dessus d’une largeur de front de délamination critique, la propagation reprend dans la direction opposée. Même si les motifs finaux présentent souvent des alternances entre

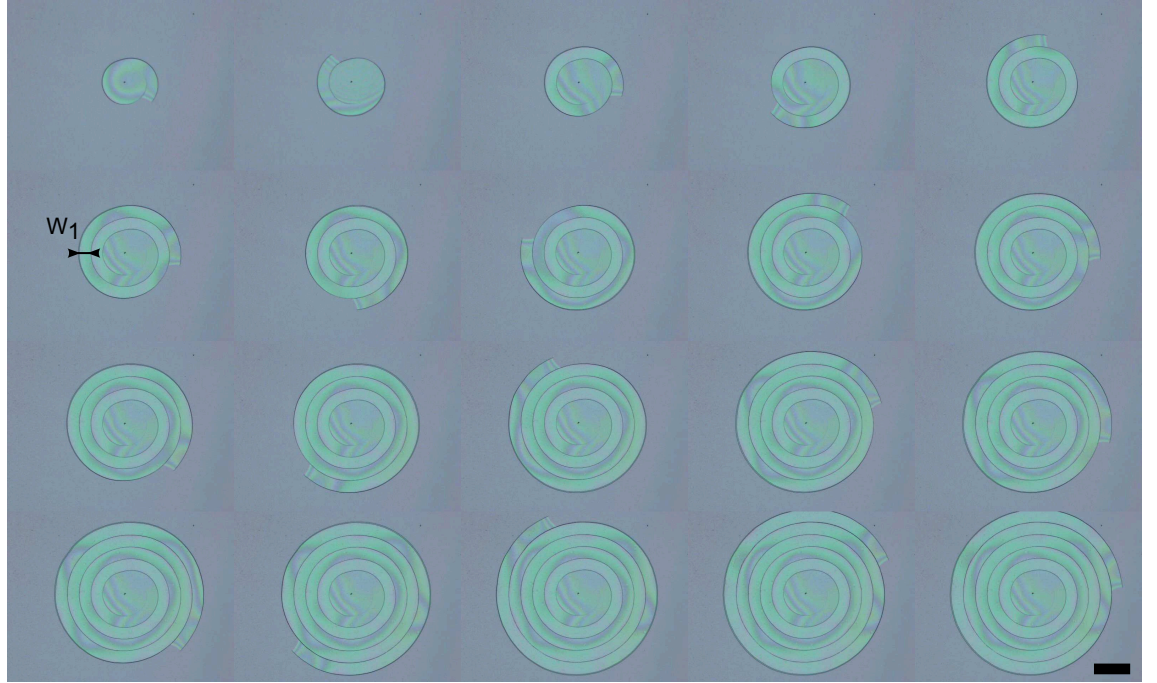


FIGURE 3.6: Propagation d'une spirale d'Archimède à partir d'un défaut isolé dans un film de spin-on-glass, déposé sur un wafer de silicium ($h_f = 1.1 \mu\text{m}$, $\Gamma = 0.3 \text{ N/m}$, échelle $100 \mu\text{m}$). La longueur d'interaction W_1 est définie comme le pas de la spirale. Les photos sont prises à un pas de temps constant de 1 s.

zone décollée et zone recollée (figure 3.10A), l'observation du phénomène en temps réel nous indique que toute la languette se soulève pendant la propagation. Le front de délamination semble attaché à la pointe de la fissure, de sorte que délamination et fracture du film sont simultanées. Nous allons voir qu'il s'agit d'un mode où les deux phénomènes collaborent. Les observations de la propagation en direct montrent donc que **les fissures et le front de délamination se propagent simultanément**.

Dans le cas des duos (figure 3.5), le front de délamination est droit et relie les fissures entre elles. Dans le cas des spirales (figure 3.6), des allées de croissants (figure 3.7) ou des rangées de fissures parallèles (figure 3.8), le front de délamination relie la fissure qui se propage à la trajectoire d'une fissure antérieure : nous parlerons alors de fissures suiveuses (figure 3.9).

Les fissures s'amorcent sur des défauts (poussières lors du dépôt) ou à partir des bords du wafer. Nous pouvons forcer le phénomène en indentant localement la couche ou en la rayant. Cependant l'échelle caractéristique du phénomène et la fragilité de la couche ne nous permettent pas de maîtriser les conditions initiales de la propagation. Les duos et les spirales s'amorcent sur des défauts localisés dans le film. Autour de ce défaut, le film présente sou-

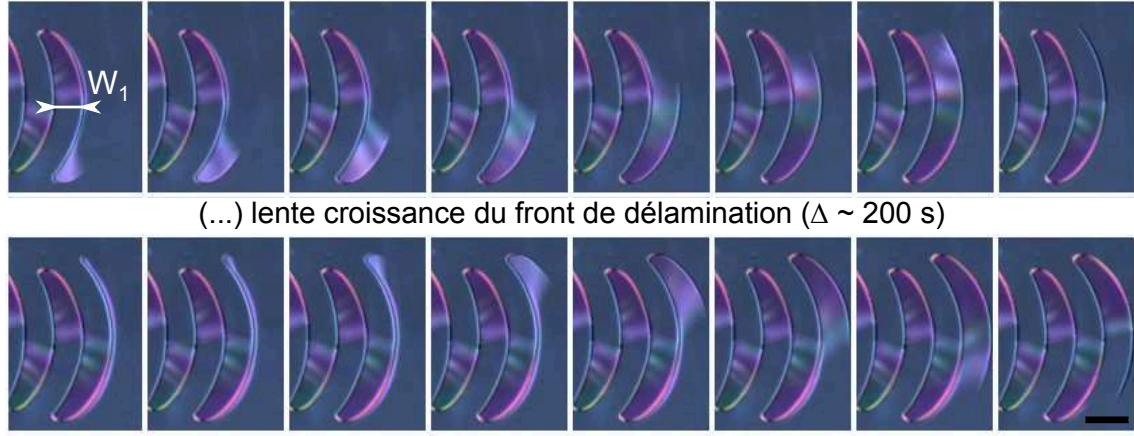


FIGURE 3.7: Propagation d'une allée régulière de croissants à partir d'un défaut allongé ($h_f = 1.2 \mu\text{m}$ $\Gamma = 0.45 \text{ N/m}$, échelle $50 \mu\text{m}$). La longueur d'interaction W_1 est définie comme la longueur d'onde de l'allée de croissants. Le pas de temps entre chaque photos est de 1 s. Entre les deux lignes, la propagation s'arrête et un front de délamination grandit lentement à partir du bord de la fissure précédente qui adhère encore au substrat. La lente propagation du front de délamination n'est pas représentée ici.

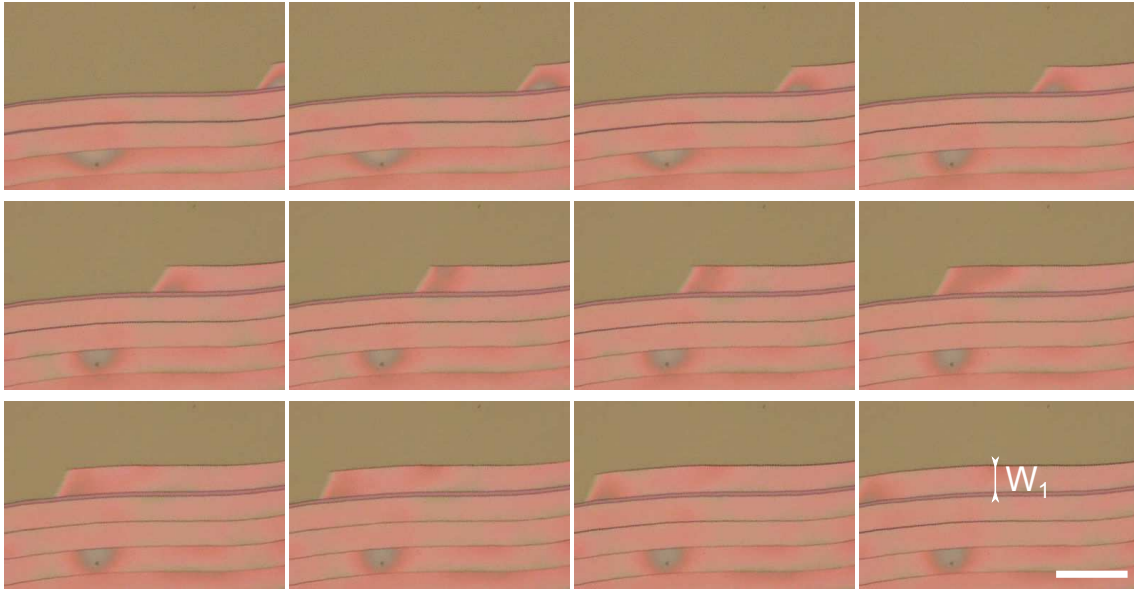


FIGURE 3.8: Propagation de fissures suivies se propageant successivement en formant des rangées de fissures parallèles ($h_f = 1.15 \mu\text{m}$ $\Gamma = 0.3 \text{ N/m}$, échelle $100 \mu\text{m}$). Le pas de temps entre chaque photos est de 0.5 s. Le retrait dû au relâchement des contraintes dans la largeur de la languette est très visible et conduit à de grands écarts entre les languettes.

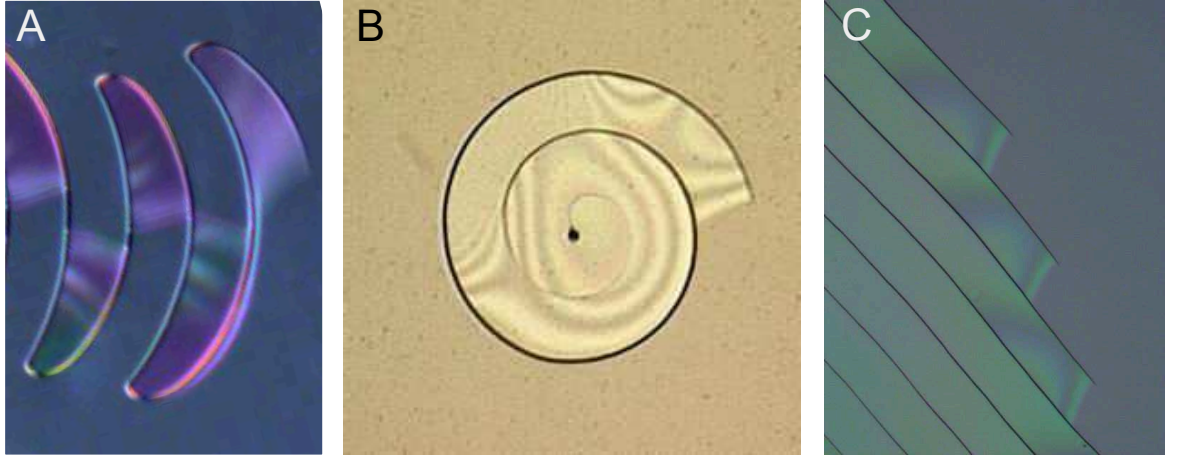


FIGURE 3.9: Les allées de croissants (A), les spirales (B) et les rangées de fissures parallèles (C) présentent un front de délamination qui relie la fissure qui se propage à une fissure antérieure. Même si le détail de la géométrie du front varie d'un motif à l'autre, la description énergétique de la propagation est similaire : il s'agit de "fissures suiveuses".

vent une inhomogénéité permettant la propagation initiale d'un court segment de fissure isolée. Un front de délamination se propage à partir de cette ligne initiale et la propagation coopérative démarre. Nous observons des spirales à deux et trois branches (figure 3.26) si la nucléation a lieu simultanément à partir de deux bords (resp. trois bords) d'une nucléation en étoile à 120° . Les allées de croissants s'amorcent à partir des bords de l'échantillon ou d'un défaut localisé dans le film. L'amorçage ressemble à celle des spirales mais la propagation s'interrompt avant de reprendre dans la direction opposée. Notons l'existence d'allées de croissants d'amplitudes différentes que nous caractérisons par leurs rapports d'aspect (amplitude a des allées divisée par la longueur d'onde W_1). Par exemple, nous observons des allées de large rapport d'aspect dans la figure 3.10A, de faible rapport d'aspect dans la figure 3.10C.

3.2.3 Taille des duos W_2 et des fissures suiveuses W_1

Les duos de fissures se propagent à une distance W_2 l'une de l'autre. Sur la figure 3.5, la distance entre les deux fissures augmente progressivement avant d'atteindre une taille d'interaction stable. Nous mesurons la largeur du front de délaminage en régime stationnaire W_2 en fonction de l'épaisseur du film h_f pour différentes valeurs de l'énergie d'adhésion Γ et différentes épaisseurs du film (symboles pleins dans la figure 3.11A). W_2 augmente linéairement avec l'épaisseur sur une décade ($W_2 \simeq 25h_f$). Le facteur 25 est effectivement grand et la taille d'interaction est donc grande devant l'épaisseur. La longueur sélectionnée est indépendante de l'énergie d'adhésion Γ .

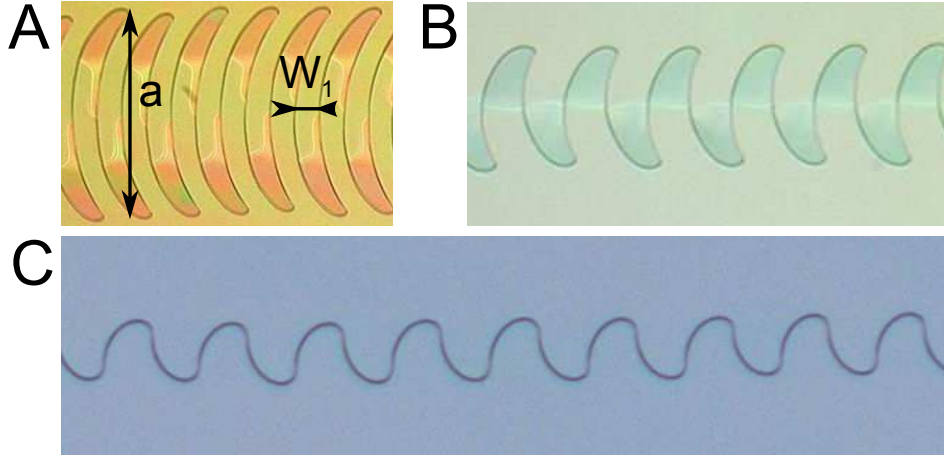


FIGURE 3.10: Allées de croissants de rapport d'aspect grand (A), moyen (B) et petit (C). Le rapport d'aspect est défini comme l'amplitude des oscillations a divisée par leurs longueurs d'onde W_1 .

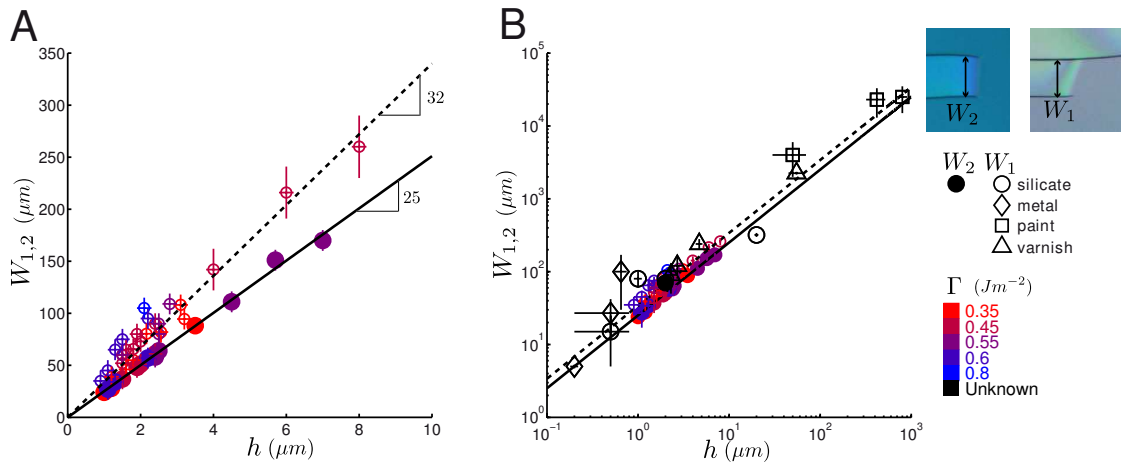


FIGURE 3.11: (A) Largeur du front de délaminage en fonction de l'épaisseur du film h_f pour différentes énergies d'adhésion Γ_0 : largeur d'une branche de spirale et longueur d'onde d'une allée de croissants (W_1 symboles vides) et largeur d'une bande formée par un duo de fissures (W_2 symboles pleins). (B) Largeur du front pour différents systèmes (autres films de silice, films métalliques dans la littérature et mesure sur des couches de vernis filtré ou de peinture).

Nous pouvons de la même manière mesurer la taille caractéristique entre fissures W_1 pour des fissures suiveuses (figure 3.9). La largeur des branches des spirales, des rangées de fissures parallèles ou la longueur d'onde des allées de croissants sont appelées W_1 . Cette largeur est également indépendante de l'énergie d'adhésion (figure 3.11A) et augmente linéairement avec l'épaisseur sur une décade ($W_1 \simeq 32h_f$).

Cette caractéristique très robuste est également observée sur des systèmes très différents. Nous reportons les tailles caractéristiques W_1 et W_2 des films métalliques présentés précédemment, de couches de vernis filtrés et des couches de peinture (présentée dans la section 3.1.3) sur la figure 3.11B. La taille sélectionnée semble **indépendante des propriétés de la couche, de l'intensité du chargement, des propriétés de rupture de la couche et de l'interface**. Cette relation est valable sur 4 décades pour des épaisseurs de couches variant de la centaine de nanomètres au millimètre.

3.2.4 Rupture de films stables : un argument en régime permanent.

En augmentant l'adhésion de la couche avec le substrat, nous observons le mode de propagation habituel de fissures isolées. L'épaisseur critique nécessaire pour que de telles fissures se propagent est alors de $h_c = 1.8 \mu\text{m}$. La propagation de fissures en spirales ($h_f = 0.9 \mu\text{m}$) a lieu pour des films plus fins lorsque l'adhésion avec le substrat est faible. Nous observons donc la ruine de films réputés stables selon les critères usuels de la propagation de la rupture !

Le nouveau mode de propagation qui nous intéresse dans cette thèse repose sur un mécanisme différent. Lors de la propagation d'une fissure isolée, les contraintes sont principalement relâchées dans la direction perpendiculaire à la fissure (figure 3.12A). Lorsque deux fissures collaborent avec la délamination pour former une languette, toute l'énergie résiduelle est relâchée loin du front de délamination (figure 3.12B). C'est la libération de l'énergie sur la grande surface de la languette qui est le moteur pour la propagation de ce nouveau mode de rupture.

Supposons que deux fissures se propagent tout droit en régime permanent. Elles sont séparées par un front de délamination de largeur W . Les fissures se propagent si l'énergie relâchée lors de la propagation équilibre les énergies de fissures. La densité surfacique d'énergie élastique contenue dans le film est $e = h_f \sigma^2 (1 - \nu_f) / E_f$ (d'après l'équation 2.11). Un duo de fissures peut se propager si l'énergie relâchée dans la languette $W e h_f L$ est supérieure à l'énergie des deux fissures et du front de délamination $(2G_c - 2\gamma e) h_f L - \Gamma W L$. La propagation est donc énergétiquement possible si :

$$W \geq \frac{2(G_c - \gamma e)}{e - \Gamma} h_f \quad (3.1)$$

Si les deux fissures sont suffisamment éloignées, l'énergie relâchée dans la

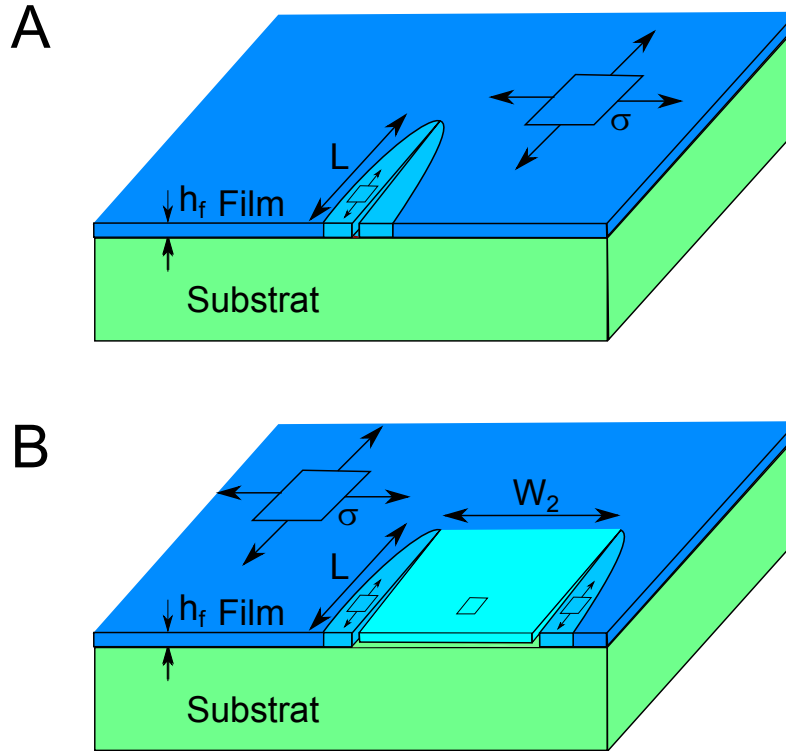


FIGURE 3.12: (A) Propagation d'une fissure isolée dans un film soumis à des contraintes résiduelles σ . L'énergie élastique est relâchée dans la zone délaminiée entourant la fissure, principalement dans la direction x perpendiculaire à la fissure. (B) Duo de fissures schématisant un mode de propagation collaboratif entre fissure et délaminage. L'énergie dans la languette définie par les trois bords libres est complètement relâchée dans ce cas de propagation.

languette est supérieure aux énergies de rupture des deux fissures et à l'énergie interfaciale. La propagation a lieu grâce à la coopération entre délaminage et fissure qui permet de relâcher l'énergie élastique sur toute la largeur du front de délaminage. Cette description explique donc comment des fissures peuvent se propager pour des épaisseurs inférieures à l'épaisseur critique.

Elle est pourtant doublement problématique lorsque nous la comparons aux expériences :

- Nous obtenons une taille minimale de propagation. Si la propagation est possible, nous pouvons penser que les deux fissures divergent. En effet, plus la distance entre les deux fissures est grande, plus l'énergie relâchée est importante et mieux le critère de Griffith est satisfait !
- D'autre part, les expériences montrent que la taille sélectionnée est grande devant l'épaisseur de la couche et ne dépend pas de l'énergie d'adhésion. Le terme $2(G_c - \gamma e)$ est d'ordre 1 J/m^2 pour une épaisseur

proche des conditions de propagation de fissures isolées. Pour que W soit grand, il faut donc que le terme $e - \Gamma$ soit petit. Ceci est possible si e et Γ sont proches, ce qui est vraisemblable puisque nous observons une délamination diffuse autour des défauts. Cependant si la taille sélectionnée W dépendait de cette différence, elle serait très dépendante des petites variations de cette différence et varierait beaucoup avec l'énergie d'adhésion.

Cette description de la sélection de la taille W est donc trop sommaire. D'un point de vue théorique, elle est de toutes façons discutable, puisqu'il s'agit d'une application du critère de Griffith qui donne les conditions de propagation en supposant une trajectoire connue et ne permet pas de déterminer la direction de propagation des fissures. Dans la section suivante (3.3), nous appliquons le principe de maximum du taux de restitution d'énergie afin de déterminer la trajectoire des fissures puis la taille optimale.

3.2.5 Conclusion

Nous observons des motifs de fissures étonnants dans des films *a priori* considérés comme stables selon les critères habituels de propagation. Cette propagation est possible parce que l'interaction entre plusieurs fissures et le décollement du substrat permet de relâcher complètement l'énergie élastique lorsque l'adhésion est faible. Les tailles entre fissures sont très robustes, proportionnelles à l'épaisseur du film et très grandes devant l'épaisseur. Les motifs sont observés dans un grand nombre de systèmes présentant des contraintes résiduelles et des énergies de rupture très différentes. Les tailles entre fissures observées expérimentalement semblent indépendantes de ces conditions et ne dépendent universellement que de leur épaisseur. Nous présenterons un modèle plus abouti de sélection de la taille des duos de fissures dans la section suivante 3.3.

D'un point de vue pratique, ce mode de propagation peut sembler *a priori* anecdotique car il met en jeu de faibles énergies d'adhésion entre la couche et le substrat, condition que l'on évite lors du dépôt. Cependant, les développements récents de la fonctionnalisation de substrats présentant une faible énergie d'adhésion (polymère de l'électronique flexible, électrolyte des piles à combustible, biomatériaux) en fait un mode de ruine crédible et dangereux pour les couches industriels.

3.3 Duo de fissures simultanées

Nous nous intéressons dans cette section à la propagation de “duos de fissures” simultanées (figure 3.5). Il s'agit du cas où la géométrie est la plus simple (et symétrique). Pour comprendre l'origine de ces motifs qui présentent une taille W_2 très robuste, nous étudions l'évolution de la largeur W d'une languette (comme sur la figure 3.13) au cours de sa propagation. Nous proposons

un modèle de propagation décrivant la répartition de l'énergie résiduelle dans la languette lors de la propagation (3.3.1). Nous validons cette description expérimentalement et par éléments finis en estimant les champs de déformations dans la languette (3.3.2). Nous montrons alors l'existence d'une taille stable en appliquant le principe du maximum de taux de restitution d'énergie (3.3.3). Un calcul numérique par éléments finis valide notre approche énergétique (3.3.4) : nous retrouvons la même phénoménologie en considérant la répartition des contraintes dans la languette. Nous déterminons enfin les conditions de propagation en utilisant le critère de Griffith (3.3.5) et la dépendance de la taille sélectionnée avec les propriétés élastiques de la couche (3.3.6).

3.3.1 Approche énergétique

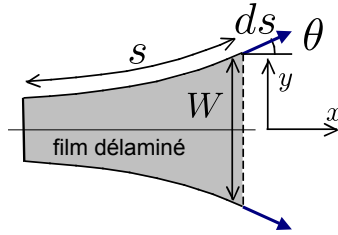


FIGURE 3.13: Schéma de propagation des fissures et du front de délamination pour un duo de fissures. Une paire de fissures symétriques forme une languette de largeur W . La fissure se propage d'une longueur ds dans la direction θ définie par la normale au front.

Considérons le cas général d'une paire de fissures symétriques se propageant simultanément dans une direction θ le long d'un chemin arbitraire de coordonnée curviligne s . Le film entre les fissures est décollé du substrat (figure 3.13). En négligeant les effets de la courbure du chemin de fissure, l'énergie relâchée sur les côtés de chacune des fissures est proportionnelle à leur longueur $2\gamma e h_f s$. Rappelons que $e = \sigma^2(1 - \nu_f)/E_f$ est l'énergie résiduelle par unité de surface.

L'aire délaminée A étant délimitée par trois bords libres, les contraintes résiduelles sont complètement relâchées dans la bande, à l'exception de la région proche du front de délaminage dont la relaxation est limitée par les conditions aux limites. Dans cette région, deux effets antagonistes déterminent la façon dont l'énergie élastique est relâchée dans la couche. Ces deux effets sont cruciaux dans la sélection de la taille observée expérimentalement. Comme ce problème élastique est linéaire, nous pouvons appliquer le principe de superposition et considérer les deux effets indépendamment.

Déformation selon y : effet de surface

Les conditions aux limites en tête de languette empêchent les contraintes de se relâcher complètement dans la direction y (figure 3.13). En effet, au-delà du front de décollement, nous retrouvons des déformations résiduelles ($\epsilon_{yy} = \epsilon_0$). La zone mal relâchée est la solution d'un problème de membrane élastique bidimensionnel en contrainte plane où la seule taille caractéristique est la largeur de la languette W , sa longueur étant infinie. Les équations de l'élasticité sont du quatrième ordre et la résolution d'un problème élastique se ramène donc à une équation bilaplacienne (et non laplacienne comme en électrostatique ou en mécanique des fluides parfaits). Comme l'élasticité impose l'existence de solutions biharmoniques, l'influence des conditions aux limites se fait sentir jusqu'à une distance caractéristique W . Cette zone où le relâchement élastique n'est pas complètement possible à une aire caractéristique proportionnelle à W^2 . Ceci correspond à une énergie résiduelle $\alpha e W^2$, quadratique en W où α est un préfacteur que nous déterminerons numériquement. Nous verrons que cet effet a tendance à faire converger les deux fissures l'une vers l'autre.

Déformation selon x : effet de ligne

L'effet des conditions aux limites pour les déplacements et les contraintes perpendiculaires au front de délaminage (selon ϵ_{xx} , σ_{xx}) est très différent. Il est difficile à calculer mais nous pouvons suivre le raisonnement suivant. Considérons les déplacements dans le plan de symétrie (x, z) en $y = 0$ (figure 3.14).

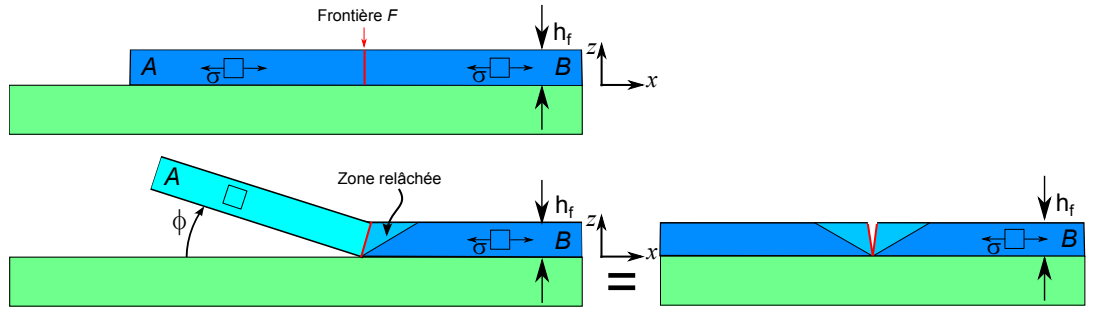


FIGURE 3.14: Lorsque l'on décolle le volume A du substrat, l'énergie élastique est relâchée dans la languette qui transmet un effort nul sur la frontière F . La situation pour le volume B est donc très similaire au cas de propagation d'une fissure isolée étudiée dans la section 2.4.1

La languette (volume A) est libre de déplacements selon x et z car elle n'est plus collée au substrat, ni retenue à ses extrémités. Elle transmet donc un effort nul (bords libres) sur la frontière F de la partie encore collée B . Cette condition de bords libres est celle que l'on trouve sur les bords d'une fissure traversante standard (section 2.4.1). Elle donne lieu à une ouverture

des lèvres de fissures (le déplacement $u_x(z = h_f)$ est maximal et diminue le long de l'épaisseur pour s'annuler en $u_x(z = 0)$) et permet le relâchement sur une zone de taille typique h^2 au-delà du front de décollement. Un tel déplacement conduit ici à une rotation solide de la languette qui se soulève selon un angle ϕ . Il s'agit d'un effet de cisaillement dans l'épaisseur, et non plus d'un comportement membranaire.

Nous mesurons la hauteur de l'interface par ellipsométrie. La mesure est délicate car nous devons l'effectuer lors de la propagation. Les hauteurs mesurées sont de l'ordre de quelques microns. Les languettes ne présentent pas de courbure résiduelle et les hauteurs obtenues sont compatibles avec une rotation solide à un angle ϕ .

La compétition entre l'effet de ligne et l'effet de surface va faire apparaître une nouvelle taille caractéristique dans le problème qui sera uniquement fixée par l'élasticité.

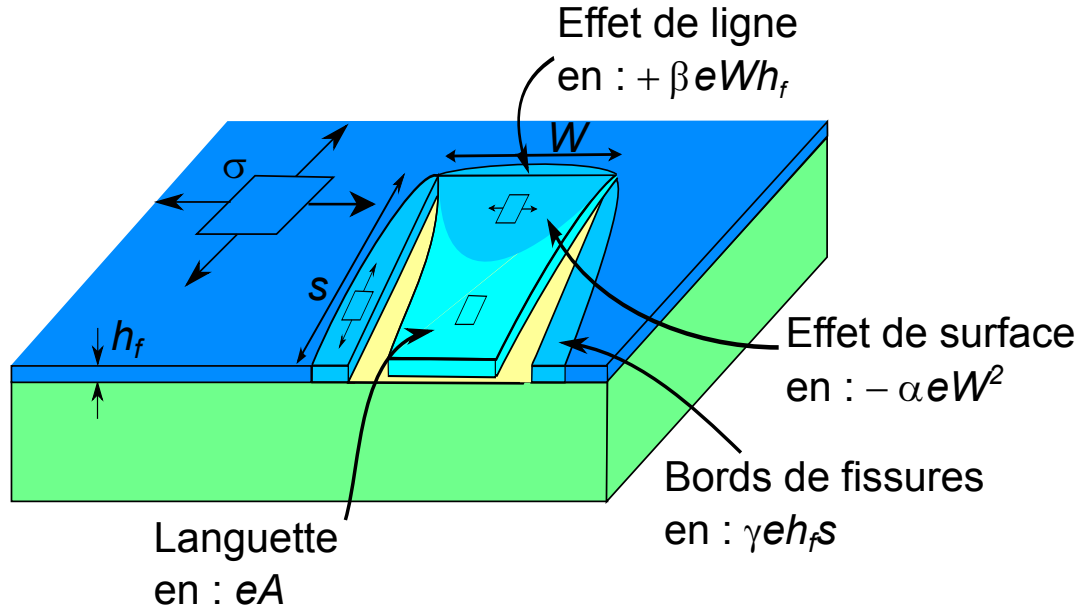


FIGURE 3.15: L'énergie élastique totale emmagasinée dans le film diffère donc de l'état initial contraint de $\mathcal{E}_r = e(A - \alpha W^2 + \beta h W + 2\gamma h_f s)$. Les deux termes d'effet de surface (en $-\alpha e W^2$) et d'effet de ligne (en $\beta e h W$) ne dépendent que des paramètres élastiques du film et du substrat.

Estimation de l'énergie relâchée

L'énergie élastique totale emmagasinée dans le film (figure 3.16) diffère donc de l'état initial contraint de :

$$\mathcal{E}_r = e(A - \alpha W^2 + \beta h W + 2\gamma h_f s) \quad (3.2)$$

où les paramètres adimensionnés α, β, γ ne dépendent que de la différence des propriétés élastiques entre le film et le substrat et du coefficient de Poisson du film. Nous vérifions indépendamment la pertinence de cette description en estimant le champ de déformation par des mesures de corrélations d'images et par simulation par éléments finis.

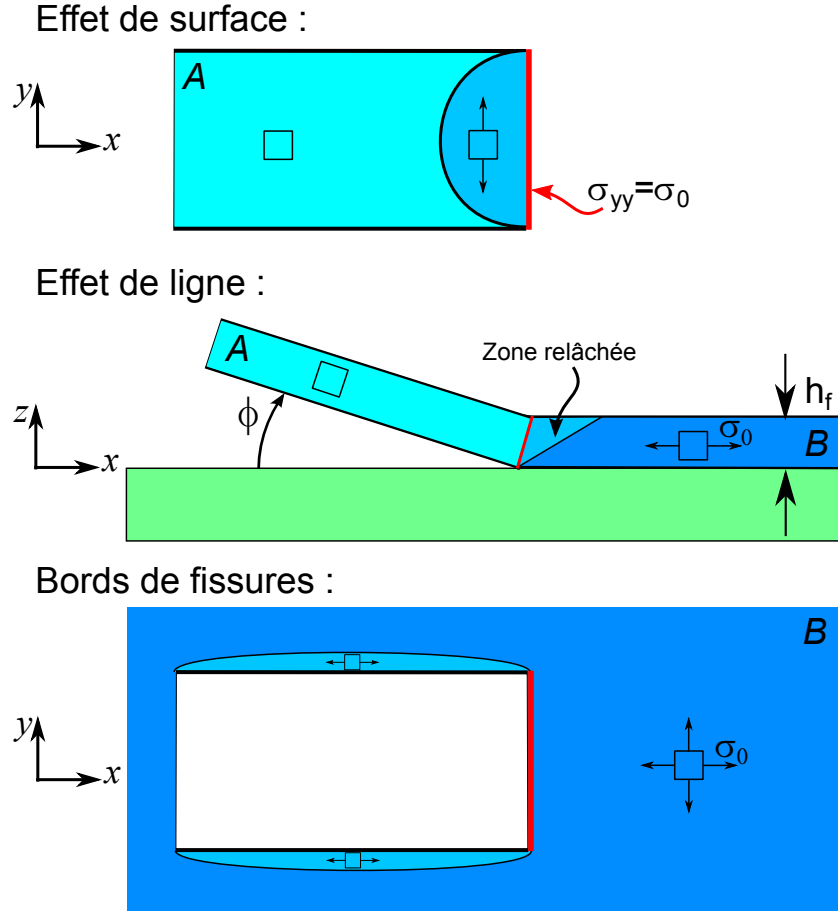


FIGURE 3.16: Schéma récapitulant l'effet de ligne, l'effet de surface et les bords de fissures qui corrigent l'énergie élastique totale emmagasinée dans le film \mathcal{E}_r

3.3.2 Champs de déformations dans une languette

Estimation expérimentale : par corrélation d'image

On dépose des particules micrométriques de suie sur la surface de la couche en exposant brièvement la surface du film à la flamme d'une bougie. Le champ de déplacement résultant de la propagation de la fissure est mesuré à partir de la corrélation d'image de ces traceurs effectuée par le logiciel DAVIS de La-Vision. Nous effectuons la corrélation sur deux images séparées dans le temps

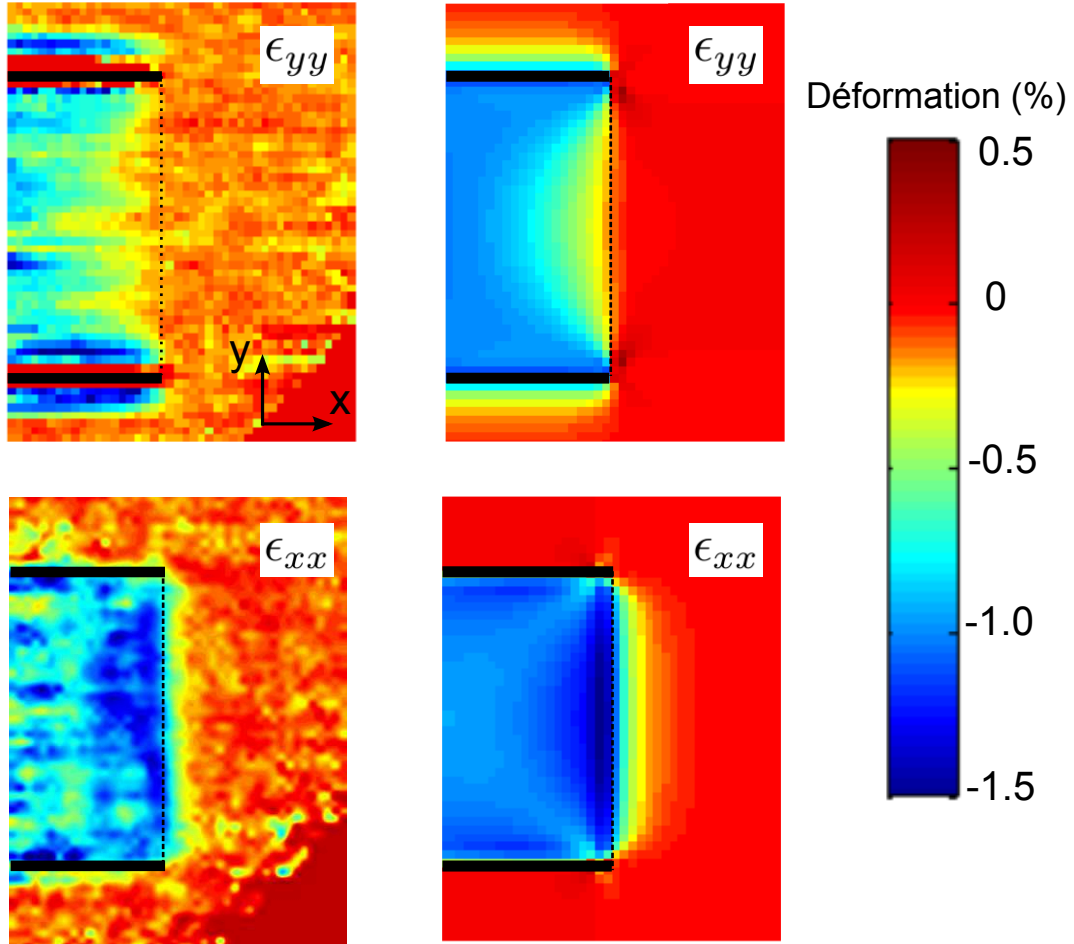


FIGURE 3.17: Champ de déformation par rapport à l'état contraint expérimental obtenu par corrélation d'image (gauche) et comparaison avec les déformations obtenues par un calcul d'éléments finis tridimensionnel (droite). La limite du front de délamination reliant les deux fissures est indiquée en pointillés. La composante ϵ_{yy} (dessus) montre que les contraintes résiduelles sont relâchées dans la languette à l'exception d'une région proche du front de délamination en tête de languette (effet de surface). La composante ϵ_{xx} (dessous) illustre le relâchement de l'énergie élastique à l'avant du front de décollement dû à l'effet de ligne.

puis nous moyennons les champs sur 50 couples d'images. Nous observons une déformation légèrement supérieure à 1% dans la languette, compatible avec la mesure des contraintes résiduelles du film ($\sigma = 55$ MPa). Près de la tête de la languette, nous voyons apparaître des caractéristiques du champ de déformation. Une zone relâchée devant les deux fissures est visible sur le champ de déformation selon x (effet de ligne) tandis qu'une partie des déformations selon y reste peu relâchée dans une zone en tête de languette (effet de surface). Ces observations sont compatibles avec les ingrédients du modèle présentés au paragraphe précédent.

Estimation numérique : par éléments finis

Les champs de déformation dans la languette sont déterminés numériquement par un calcul tridimensionnel en élasticité linéaire par éléments finis sur le logiciel Abaqus. Considérons un film mince soumis à une déformation résiduelle de 1% d'origine thermique issue d'un désaccord de coefficient d'extension thermique entre la couche et le substrat. Nous supposons pour l'instant que le substrat est infiniment rigide et nous encastrons la surface inférieure du film mince. Nous considérons une languette décollée du substrat sur une surface A . Nous imposons une géométrie rectangulaire, conforme aux observations expérimentales : le front de délaminage est une droite reliant les deux fissures, les fissures sont normales au substrat (figure 3.19A). La languette se lève spontanément illustrant le cisaillement en tête de languette décrit par le terme en effet de ligne. Les champs de déformation en tête de languette sont en accord avec les mesures des champs par corrélation d'image (figure 3.17).

3.3.3 Une taille stable : critère du maximum du taux de restitution d'énergie

Notre description approchée du champ de déformation est donc validée sur la géométrie rectangulaire. Nous considérerons qu'ils restent valides pour une géométrie quelconque du trajet de fissures. Sous cette hypothèse, nous cherchons à déterminer l'évolution de la largeur W d'une languette au cours de la propagation. Considérons la variation d'énergie élastique lors d'une propagation de la fissure de ds dans la direction θ (figure 3.13). En utilisant les relations géométriques $dA = W ds \cos \theta$ et $dW = 2 ds \sin \theta$, l'énergie relâchée (équation 3.2) s'écrit :

$$d\mathcal{E}_r = e[W \cos \theta + 2\gamma h_f - 2(2\alpha W - \beta h_f) \sin \theta] ds \quad (3.3)$$

La fissure se propage dès que cette énergie excède l'énergie dissipée par les deux fissures $2G_c h_f ds$ et par le front de délaminage $\Gamma W \cos \theta ds$. Nous obtenons alors la condition de propagation :

$$e[W \cos \theta + 2\gamma h_f - 2(2\alpha W - \beta h_f) \sin \theta] = \Gamma W \cos \theta + 2G_c h_f, \quad (3.4)$$

Comme nous l'avons vu dans la section 2.2.2, les fissures se propagent dans la direction qui maximise le taux de restitution d'énergie potentielle. C'est la première direction pour laquelle le critère de Griffith sera satisfait à chargement croissant. Nous cherchons donc la direction θ qui restitue le plus d'énergie pour une propagation de ds . Cette condition s'écrit $\partial(d\mathcal{E}_r/ds - \Gamma W \cos \theta + 2G_c h_f)/\partial \theta = 0$ et nous obtenons donc :

$$eW \sin \theta + 2e(2\alpha W - \beta h_f) \cos \theta = \Gamma W \sin \theta \quad (3.5)$$

En combinant les équations (3.4) et (3.5), nous obtenons finalement :

$$(e - \Gamma)W = 2(G_c - \gamma e)h_f \cos \theta \quad (3.6)$$

et

$$\sin \theta = -\frac{e}{G_c - \gamma e}(2\alpha W/h_f - \beta) \quad (3.7)$$

La propagation est donc droite ($\theta = 0$) pour une distance W_2 entre les fissures définie par :

$$W_2 = \frac{\beta}{2\alpha} h_f, \quad (3.8)$$

Cette largeur est stable. Si W est supérieure à W_2 , l'angle de propagation θ est négatif et les deux fissures se rapprochent. Inversement, lorsque W est inférieure à W_2 , l'angle de propagation est positif et les deux fissures s'éloignent. Le signe de θ compense donc les déviations de W_2 . Ceci conduit au délaminage d'une bande de largeur bien définie.

Relaxation vers la taille optimale

Calculons sur quelle distance la largeur initiale de la languette W converge vers la largeur optimale W_2 . Introduisons $\sin \theta = \frac{1}{2}dW/ds$ dans l'équation 3.7, nous obtenons :

$$\frac{dW}{ds} = \frac{1}{\zeta}(W_2 - W) \quad (3.9)$$

ce qui conduit à une relaxation exponentielle de W vers W_2 avec une taille caractéristique ζ :

$$\zeta = \frac{G_c - \gamma e}{4e\alpha} h_f \quad (3.10)$$

Cette convergence rapide vers la taille optimale est une caractéristique frappante observée dans l'expérience. Lorsqu'une fissure est déviée par un défaut dans le film, elle se ramène rapidement à la taille optimale. Estimons cette taille de relaxation, $(G_c - \gamma e)/2e$ est d'ordre unité (tout comme β), ζ est donc du même ordre que W_2 . Les propagations expérimentales observées dans du vernis (figure 3.3C) ou dans des films de SOG (figure 3.18) présentent effectivement des tailles de relaxation de l'ordre de la taille optimale W_2 .

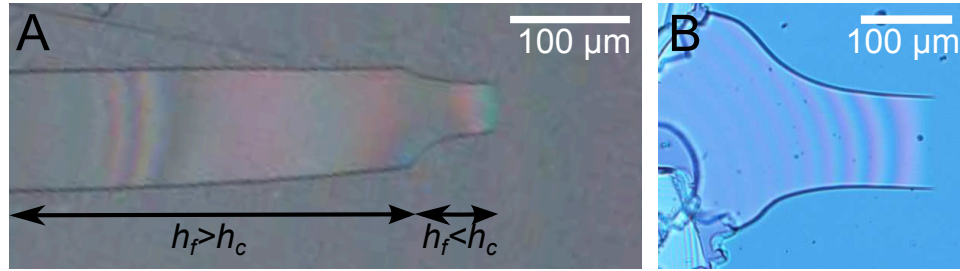


FIGURE 3.18: (A) Relaxation d'un duo de fissures vers sa taille optimale. Un film de SOG présente un gradient d'épaisseur. À gauche, l'épaisseur est supérieure à l'épaisseur critique de propagation d'une fissure isolée. Deux fissures isolées se propagent indépendamment jusqu'à atteindre l'épaisseur critique où la propagation n'est plus possible ($h_c = 1.8 \mu m$). Un front de délaminage se propage postérieurement entre les deux fissures jusqu'à atteindre l'extrémité de celles-ci. La propagation en duo commence alors et nous observons une relaxation rapide vers la distance optimale W_2 pour une épaisseur de $1.6 \mu m$. (B) Relaxation d'un duo de fissures dans un film de $4.1 \mu m$ d'épaisseur pour une adhésion plus faible. Echelle $100 \mu m$.

Une compétition entre deux effets

Ce mode de propagation en duo avec une largeur précise s'interprète par une compétition entre deux effets. Les contraintes résiduelles le long du front de délaminage sont mieux relâchées quand la largeur du front est petite. Cet effet de surface domine aux grands W et impose une propagation vers l'intérieur. Mais lorsque les fissures sont proches (à petit W), l'effet de ligne favorise leur écartement (l'énergie relâchée augmente proportionnellement avec W).

La taille optimale (équation 3.8) ne dépend que de l'épaisseur du film, des contrastes des modules de Young entre le film et le substrat et du coefficient de Poisson du film par l'intermédiaire de α et β . Il peut sembler étonnant que cette taille ne dépende ni de l'énergie d'adhésion entre le film et le substrat, ni du chargement, ni de l'énergie de rupture du film. Cependant ce résultat est très similaire à la propagation d'une fissure unique dans un film : la taille de la zone active lors de la propagation qui gouverne l'interaction entre les fissures ne dépend que des propriétés élastiques (la taille d'interaction dépend uniquement des coefficients de Dundur). L'énergie de rupture et le chargement ne sont déterminants que pour prédire si la fissure peut se propager ou non. De façon très similaire, nous verrons que le seuil de propagation de ce mode de fissure est dicté par la compétition entre le chargement et les énergies de fissure et de délaminage.

3.3.4 Détermination des paramètres élastiques : calcul par éléments finis

Détermination de α et β

Comme les coefficients α et β qui fixent la taille observée sont des constantes élastiques indépendantes de l'énergie de fissure et du chargement, nous déterminons leur valeur par un calcul par éléments finis de l'énergie élastique dans un film mince soumis à des contraintes résiduelles. Considérons de nouveau une languette décollée du substrat sur une surface A avec la même géométrie que précédemment. Nous calculons numériquement la différence entre l'énergie élastique contenue dans la couche dans cette géométrie et l'énergie élastique totale disponible dans la languette $(\mathcal{E}_r - e s W)/e h_f^2$ où $A = s W$. La différence est une mesure directe des deux effets antagonistes (effet de ligne et de surface) qui ont lieu en tête de la languette en suivant l'équation 3.2. Cette différence doit prendre la forme $\alpha(W/h_f)^2 - \beta W/h_f + c$ que nous avons postulée. L'évaluation numérique montre que cette quantité est bien décrite par une fonction quadratique et nous obtenons les deux préfacteurs en ajustant les paramètres $\alpha \simeq 0.025$ et $\beta \simeq 0.64$ (figure 3.19C).

Nous obtenons donc une largeur $W_2 = \beta/2\alpha h_f \simeq 13 h_f$ qui est effectivement assez grande devant l'épaisseur du film h_f . Ceci vient du fait que si $\beta \simeq 0.64$ est d'ordre 1, le facteur $\alpha \simeq 2 \times 10^{-2}$ est assez petit. Cependant le rapport $\beta/2\alpha$ est inférieure à la valeur obtenue expérimentalement $W_2 \sim 25 h_f$ (figure 3.11). Une explication possible de cette sous-estimation est que nous avons négligé les effets de courbure de la trajectoire de la fissure, que nous estimons dans la section suivante.

Effet de courbure de la trajectoire de fissure

En dehors de la bande décollée, les contraintes sont partiellement relâchées perpendiculairement à la fissure (c'est ce mécanisme qui conduit à la propagation de fissures isolées). Dans la description précédente, nous supposons que l'énergie élastique $\gamma h_f s$ est proportionnelle à la longueur de la fissure s , indépendamment de la courbure du chemin de fissure. Le préfacteur γ est en effet obtenu numériquement pour un trajet de fissures droit, en utilisant le fait que le champ de contrainte est invariant le long d'une fissure (déformation plane). Cela n'est plus vrai pour un chemin de fissures courbé, où le champ de contrainte devient tridimensionnel. Cet effet favorise la propagation vers l'extérieur. Pour s'en convaincre, considérons le cas limite d'un changement de direction perpendiculaire. Dans le cas d'une propagation rectiligne (figure 3.20A. *Cas a*), l'énergie relâchée d'un côté de la fissure est de l'ordre de $\mathcal{E}_A = L e (1 + \nu_f)/2$. Dans le cas d'un changement de direction perpendiculaire de la fissure (figure 3.20A. *Cas b*), l'énergie devient $\mathcal{E}_B = (L - 2h_f)e(1 + \nu_f)/2 + 2h_f e$. La différence d'énergie entre les deux situations $\mathcal{E}_B - \mathcal{E}_A = 2h_f e(1 - \nu_f)$ est positive. La propagation vers l'extérieur

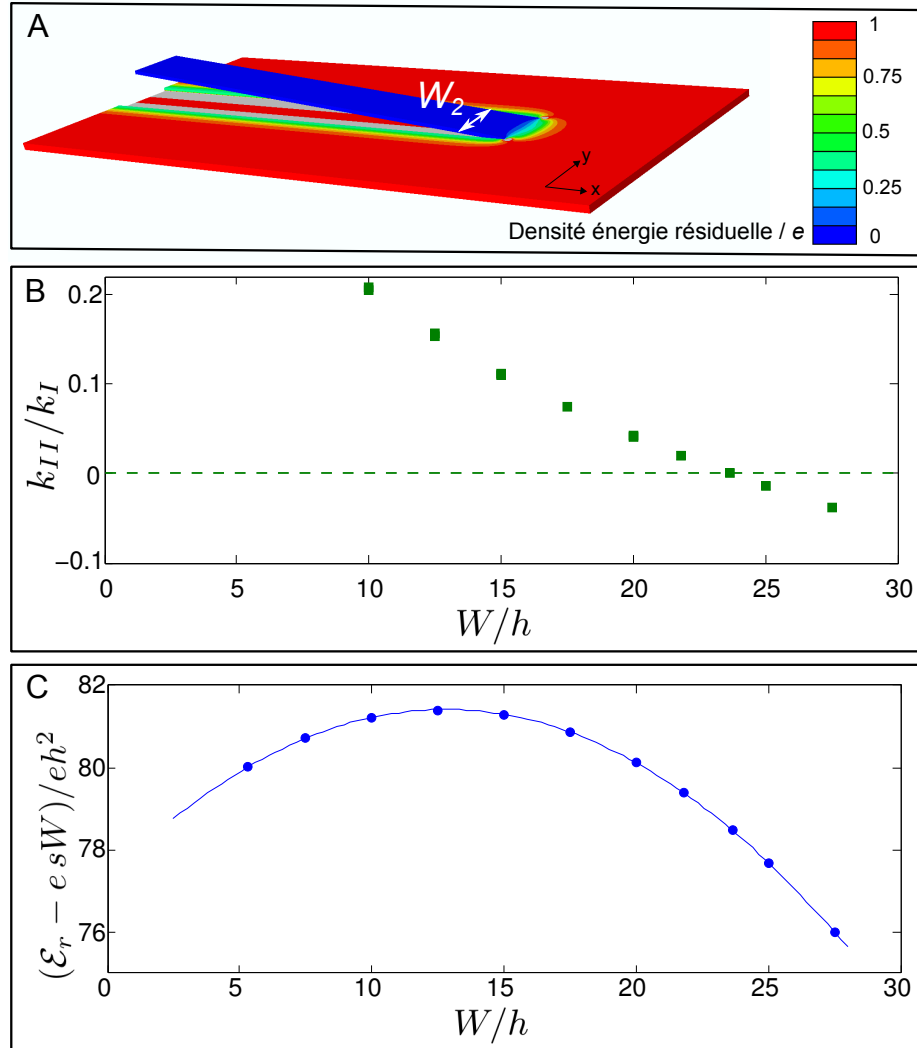


FIGURE 3.19: A, Nous calculons numériquement l'énergie élastique résiduelle dans une bande de largeur W délaminée coupée dans un film adhérent à un substrat et soumis à des contraintes résiduelles. Le film d'épaisseur h_f est déposé sur une sous-couche d'épaisseur h_f de même propriété élastique, elle-même encastrée à un substrat infiniment rigide. L'énergie dans la couche est normalisée par la densité d'énergie élastique e . Le calcul est effectué pour la largeur optimale W_2 . La languette se lève spontanément. B, Rapport du facteur d'intensité des contraintes d'une des deux fissures en tête de languette k_2/k_1 en fonction de la largeur de la languette W/h_f , où h_f est l'épaisseur du film. D'après le principe de symétrie locale, nous nous attendons à une propagation stable pour $W \simeq 23.7h_f$. C, L'énergie élastique $(\mathcal{E}_r - e s W)/eh_f^2$ calculée par la simulation numérique est bien décrite par notre modèle $-\alpha(W/h_f)^2 + \beta(W/h_f) + c$, avec $\alpha = 0.025, \beta = 0.64$.

est donc favorable énergétiquement.

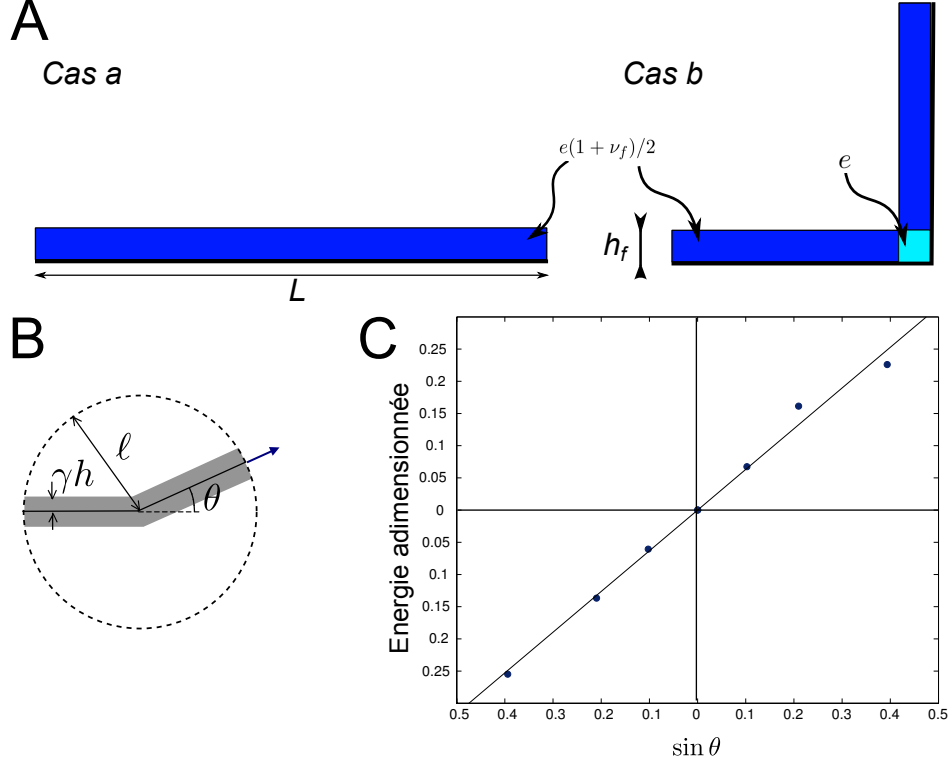


FIGURE 3.20: (A) Vues du dessus. *Cas a*. Propagation d'une fissure rectiligne. *Cas b*. Énergie relâchée du côté droit lors d'un changement de direction perpendiculaire. (B) Chemin de fissure dévié d'un angle θ . (C) Énergie relâchée supplémentaire addimensionnée par eh^2 due à la déviation θ du chemin de fissure

Pour estimer cet effet, nous calculons la perturbation de l'énergie élastique relâchée autour d'un chemin de fissure présentant un angle θ (figure 3.20B). La discontinuité est placée au centre d'un disque de rayon l que le chemin de fissure sépare en deux secteurs. Selon notre approximation, l'énergie relâchée dans chaque secteur, $\mathcal{E}_{rs}(\theta) = \gamma h_f 2l$, est indépendante de θ . Cependant, le calcul numérique montre que l'énergie relâchée dans le secteur de gauche (figure 3.20C) est plus grande lorsque θ est dirigé vers la gauche (et plus faible lorsqu'il est dirigé vers la droite).

Dans le cas d'une fissure unique, la somme des contributions des secteurs à gauche et à droite entraîne cependant un maximum d'énergie relâchée pour $\theta = 0$. Nous retrouvons donc que les fissures isolées ne forment pas d'angle mais se propagent tout droit lorsque leur condition de propagation est atteinte.

Le résultat numérique est de la forme $\mathcal{E}_{rs}(l, \theta) = e(\gamma h_f 2l + \delta h_f^2 \sin \theta)$ pour $\theta \ll 1$ et $l \gg h_f$ avec δ de l'ordre de 0.72 (dans le cas où le film est déposé

sur une sous-couche). Cette forme ne permet pas d'ajouter facilement cet effet dans la relation de Griffith (équation 3.4). Il faudrait en effet considérer une propagation infinitésimale dl d'une fissure courbée pour inclure cette contribution dans le taux de restitution d'énergie potentielle $\partial\mathcal{E}_{rs}(l, \theta)/\partial l$.

Cette quantité n'est pas directement mesurable à cause de la condition nécessaire au calcul numérique $l \gg h_f$. Pour avoir une idée de l'ordre de grandeur de cet effet, nous considérons que la correction énergétique prend place sur une distance caractéristique de l'ordre d'une épaisseur h_f . Nous obtenons ainsi un terme :

$$\frac{\partial\mathcal{E}_{rs}(l, \theta)}{\partial l} \sim \frac{\mathcal{E}_{rs}(l = \infty, \theta)}{h_f} = \delta h_f \sin \theta dl \quad (3.11)$$

avec un préfacteur inconnu d'ordre un, qui est maintenant aisément utilisable dans la relation de Griffith's. Celle-ci est ainsi modifiée en :

$$dE/dl = e[W \cos \theta + 2\gamma h_f + 2\delta h_f \sin \theta - 2(2\alpha W - \beta h_f) \sin \theta] \quad (3.12)$$

Remarquons que le terme additionnel équivaut à augmenter β en $\beta + \delta$. Inclure l'effet de la courbure conduit à une solution stable de propagation d'un duo de fissures relié par un front de délaminage séparé d'une distance :

$$\frac{W_2}{h_f} = \frac{\beta + \delta}{2\alpha}.$$

La valeur obtenue expérimentalement $W_2/h_f \simeq 25$ correspond à une correction $\delta = 0.62$, qui est compatible avec l'ordre de grandeur estimé de $\delta \simeq 0.72$. En pratique nous adaptons dans la suite la valeur du facteur $\beta \simeq 0.64$ en $\beta \simeq 1.26$ compatible avec la largeur W_2 observée dans les expériences, afin de tenir compte de l'effet de la courbure.

Nous étudierons comment la largeur W_2 dépend des propriétés mécaniques du film et du substrat dans la section 3.3.7. En particulier, nous déterminerons les dépendances des préfacteurs α , β et γ avec l'épaisseur de la sous-couche, le rapport des modules de Young de la couche et du substrat et le coefficient de Poisson ν_f du film.

3.3.5 Retour au critère de Griffith

Pour obtenir les conditions de propagation des duos de fissures nous injectons la largeur W_2 obtenue par l'équation (3.8) dans le critère de Griffith (3.6) :

$$(e - \Gamma_0)W_2 = 2(G_c - \gamma e) \quad (3.13)$$

Notons que nous retrouvons l'équation 3.1 établie en régime stationnaire de propagation pour une taille W supposée constante. Cette équation ne fait pas intervenir les détails du champ élastique près du front de délaminage qui, eux, sélectionnent W . Cette description est problématique puisqu'elle ne laisse

aucun des paramètres expérimentaux libres pour permettre la propagation quasi-statique. En effet, dans l'expérience e , G_c , h_f et Γ_0 sont fixés. En réalité, nous avons vu que l'énergie interfaciale Γ dépend de la vitesse de propagation du front de délamination. La dissipation (et donc la valeur effective de l'énergie d'adhésion Γ) est d'autant plus importante que la vitesse de sollicitation est élevée.

La propagation de la bande est donc possible lorsque l'énergie d'adhésion est exactement $\Gamma(v) = \Gamma_2$, avec :

$$\frac{\Gamma_2}{e} = 1 - 2 \left(\frac{G_c}{e} - \gamma \right) \frac{h_f}{W_2} \quad (3.14)$$

La propagation d'une bande est donc possible si l'adhésion à la vitesse de propagation $\Gamma(v) = \Gamma_2$ est supérieure à l'énergie d'adhésion à vitesse nulle Γ_0 ($\Gamma_2 > \Gamma_0$). La vitesse de propagation s'adapte donc pour obtenir une propagation quasi-statique. L'équation 3.14 donne la vitesse de propagation des fissures v qui augmente avec l'énergie résiduelle e . Expérimentalement nous observons que la vitesse de propagation est plus importante pour des films plus épais qui relâchent plus d'énergie élastique pendant la propagation des fissures.

3.3.6 Une taille stable : principe de symétrie locale

Le calcul par éléments finis utilisé pour mesurer l'énergie élastique dans la couche permet de calculer aisément les facteurs d'intensité des contraintes des deux fissures en tête de languette. Selon le principe de symétrie locale, une fissure se propage sans changer de direction si le facteur d'intensité en mode II est nul. Cette condition est vérifiée pour une valeur donnée de $W_2 = 23.7h_f$ numériquement cohérente avec la valeur déterminée expérimentalement $W_2 \simeq 25h_f$ lorsque nous considérons la configuration expérimentale avec une sous-couche de même épaisseur et propriétés élastiques que la couche (figure 3.19B). Cette taille est stable puisque le signe de k_{II} prédit une propagation vers l'intérieur pour $W > W_2$ et vers l'extérieur pour $W < W_2$. Elle est indépendante du chargement, de l'énergie d'adhésion et de l'énergie de fissure : nous retrouvons exactement les propriétés que nous avons obtenues par l'approche énergétique. Ce résultat n'est pas intuitif : les deux fissures considérées indépendamment étant entourées d'un champ de contrainte très asymétrique, il est difficile de postuler *a priori* l'existence d'une taille stable. C'est l'interaction entre les deux fissures par le front de délamination qui change les facteurs d'intensité de contraintes des deux fissures et permet l'annulation de K_{II} pour une valeur donnée de la largeur de la languette.

Si l'application de ce critère permet d'améliorer l'accord entre la prédiction quantitative et l'expérience, c'est au détriment de l'intuition physique sur l'origine de la longueur d'interaction. Comme cette description est quantitative, nous examinons dans la section suivante la robustesse de la sélection de la

taille W_2 et précisons la dépendance de celle-ci avec les coefficient de Poisson et module de Young de la couche et du substrat.

3.3.7 Influence des propriétés mécaniques sur la largeur W_2

Nous avons vu qu'expérimentalement, la sélection de la taille W_2 est très robuste pour des systèmes très divers. Comment dépend-elle des propriétés mécaniques de la couche et du substrat ? Nous allons étudier les dépendances de W_2 avec le coefficient de Poisson de la couche sur un substrat rigide, puis nous déterminerons l'influence de l'épaisseur d'une sous-couche sur la sélection de W_2 . Nous présentons des arguments physiques permettant de comprendre les dépendances de α , β et γ avec les propriétés mécaniques (dans l'approche énergétique) et nous déterminons quantitativement W_2 grâce au principe de symétrie locale.

Influence du coefficient de Poisson de la couche (substrat infiniment rigide).

Déterminons la dépendance des préfacteurs α , β et γ avec le coefficient de Poisson du film ν_f , dans le cas d'un substrat infiniment rigide et en l'absence de sous-couche. Dans l'état initial, la couche est dans un état de contraintes biaxiales. La déformation $\epsilon_0 = \sigma_0(1 - \nu_f)/E$ se traduit par une densité surfacique d'énergie élastique $e = h_f \sigma^2(1 - \nu_f)/E$. Cette énergie est relâchée dans toute l'aire décollée de la languette A , sauf près du front de délamination où les conditions aux limites maintiennent une déformation ϵ dans la direction y et où la densité surfacique d'énergie $Eh_f \epsilon^2/2$ vaut donc $e(1 - \nu_f)/2$. La surface concernée est de l'ordre de W . La dépendance prédite pour α est donc en $\alpha = (1 - \nu_f)\bar{\alpha}$ où $\bar{\alpha}$ est une constante "universelle" (indépendante du matériau). La dépendance de β et γ avec le coefficient de Poisson de la couche est la même : l'énergie relâchée le long du front de délamination étant similaire à l'énergie relâchée le long d'une fissure isolée. Nous nous attendons à une dépendance en $eh_f(1 + \nu_f)$ par unité de longueur de fissure. La dépendance est donc en $\gamma = (1 + \nu_f)\bar{\gamma}$, $\beta = (1 + \nu_f)\bar{\beta}$, (où $\bar{\beta}$ et $\bar{\gamma}$ sont des constantes "universelles"). Nous déterminons α et β en ajustant l'énergie élastique $(\mathcal{E}_r - e sW)/eh_f^2$ à notre modèle $-\alpha(W/h_f)^2 + \beta(W/h_f) + c$, (figure 3.21A) et nous vérifions ainsi numériquement les dépendances prédites : $\alpha = (1 - \nu_f)\bar{\alpha}$ (figure 3.21B) et $\beta = (1 + \nu_f)\bar{\beta}$ (figure 3.21C). Nous obtenons $\bar{\alpha} = 0.0349$, $\bar{\beta} = 0.306$. Nous voyons donc que qualitativement, la taille optimale d'interaction entre les duos W augmente avec le coefficient de Poisson de la couche (figure 3.21D). Nous attendons une dépendance en $W/h_f = (1 + \nu_f)\bar{\beta}/2(1 - \nu_f)\bar{\alpha}$ qui est raisonnablement vérifiée numériquement. Nous rappelons que la taille prédite est sous-évaluée en raison des effets de courbure du trajet de fissures qui ne sont pas corrigés ici.

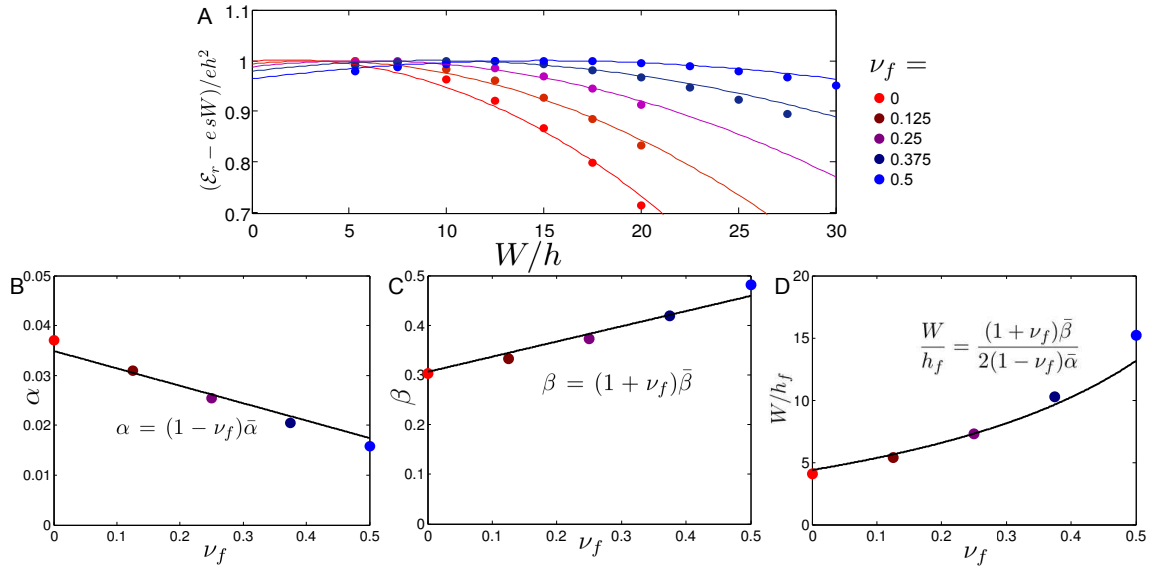


FIGURE 3.21: (A) Nous ajustons α et β pour différents coefficients de Poisson du film mince déposé sur un substrat infiniment rigide ($\nu_f = 0, 0.125, 0.25, 0.375, 0.5$). Pour la lisibilité, l'énergie relâchée est normalisée par le maximum de l'énergie relâchée pour chaque coefficient de Poisson. (B) Influence du coefficient de Poisson de la couche sur le coefficient α compatible avec une dépendance en $\alpha = (1 - \nu_f)\bar{\alpha}$, (C) avec le coefficient β , conforme avec la prédiction en $\beta = (1 + \nu_f)\bar{\beta}$. (D) La dépendance sur la taille $W/h_f = (1 + \nu_f)\bar{\beta}/2(1 - \nu_f)\bar{\alpha}$ est raisonnablement vérifiée

Retrouvons ce résultat en appliquant le principe de symétrie locale (figure 3.22A). En considérant un substrat infiniment rigide, nous varions le rapport de la largeur de la languette et son épaisseur. Nous voyons que la taille optimale prédite par le principe de symétrie locale augmente avec le coefficient de Poisson de la couche. Cette variation est compatible avec nos prédictions par le critère du maximum de taux de restitution (figure 3.21D). Les tailles optimales s'accordent si nous corrigeons la taille prédite $W/h_f = (\beta + \delta)/2\alpha$ d'un facteur δ pour tenir compte des effets de courbure de la fissure (figure 3.22B). La taille optimale varie entre $10h_f$ (pour $\nu_f = 0$) et $26h_f$ (pour $\nu_f = 0.5$) lorsque le substrat est infiniment rigide.

Influence de l'épaisseur de la sous-couche et du rapport de module de Young.

Afin de s'approcher de la situation expérimentale, nous cherchons la variation de la taille optimale W_2 avec l'épaisseur d'une sous-couche de même module élastique que la couche. Nous déterminons les variations de α , β et

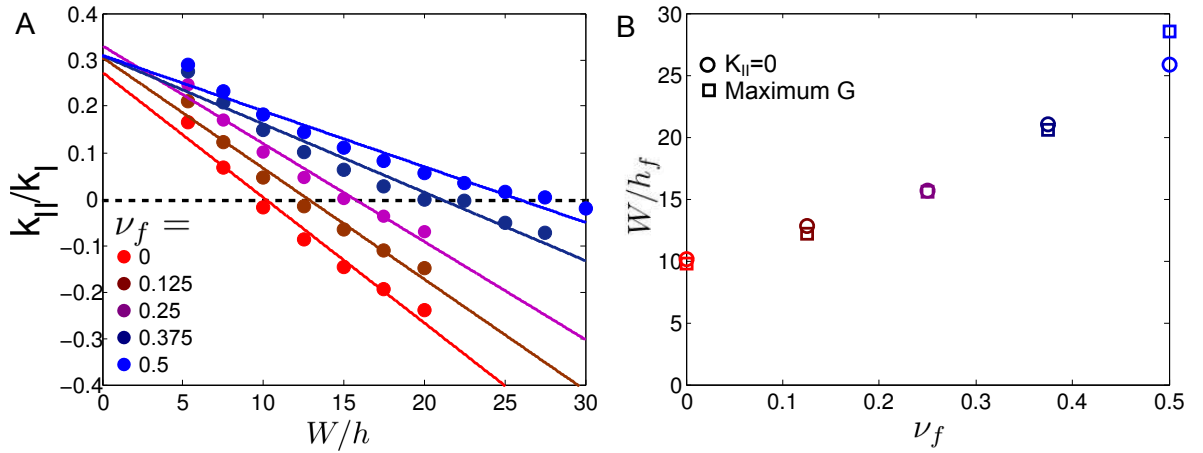


FIGURE 3.22: (A) Influence du coefficient de Poisson de la couche ν_f sur le facteur d'intensité des contraintes en mode II normalisé par le facteur d'intensité des contraintes en mode d'ouverture pour une couche déposée sur un substrat infiniment rigide. Selon le principe de symétrie locale, la taille optimale s'obtient pour la largeur telle que ce rapport s'annule. (B) Largeur optimale W_2 prédite par ce critère $W(K_{II} = 0)$ (cercle) comparée à la taille prédite par le critère du maximum de taux de restitution $W/h_f = (\beta + \delta)/2\alpha$ (carré) corrigée par un facteur $\delta = 0.42$ pour tenir compte des effets de courbure.

W_2 avec l'épaisseur de la sous-couche déposée sur un substrat infiniment rigide. Nous fixons le coefficient de Poisson de la couche et de la sous-couche à $\nu_f = 0.25$. Nous observons une faible dépendance de α (caractérisant l'effet de surface) avec les variations de l'épaisseur de la sous-couche (figure 3.23A). α traduit un effet de membrane peu dépendante des propriétés élastiques du substrat. Ce terme dépend donc uniquement du coefficient de Poisson de la couche. Au contraire, nous observons une augmentation de β avec l'épaisseur de la sous-couche (figure 3.23B). Ce terme caractérisant le cisaillement de la membrane augmente pour des substrat plus complaisant (ici pour une épaisseur de sous-couche plus importante). Cet effet est analogue à l'augmentation de γ calculée par Beuth (1992) pour une fissure isolée d'une couche déposée sur un substrat complaisant (section 2.4.1). Nous observons que la taille optimale W_2 grandit avec l'épaisseur de la sous-couche (figure 3.23B) et sature pour des épaisseurs plus importantes pour lesquels l'effet du substrat infiniment rigide est écranté. Si nous considérons une sous-couche de module de Young 10 fois supérieure à celui du substrat (points rouges), la correction sur β et W_2 est quasiment nulle.

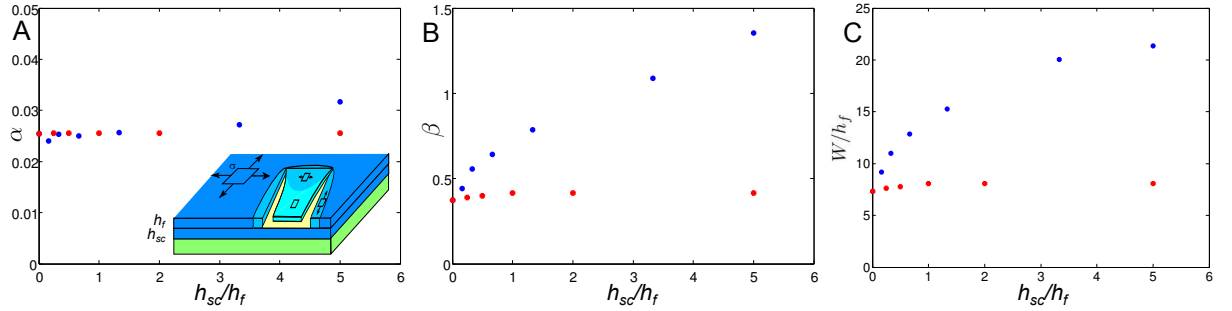


FIGURE 3.23: Influence de l'épaisseur de la sous-couche H_{sc} sur la sélection de la taille optimale (les points rouges sont obtenus pour $E_{sc} = 10E_f$, les points bleus pour $E_{sc} = E_f$). (A) α ne dépend pas de l'énergie relâchée dans le substrat et est donc indépendant de l'épaisseur de la sous-couche (B) β augmente avec l'épaisseur de la sous-couche. Notons que lorsque l'épaisseur de la sous-couche augmente, l'effet du substrat rigide est écranté et l'effet sur β sature. (C) La taille des duos W_2 prédite par notre modèle augmente avec l'épaisseur de la sous-couche. La taille prédite augmente avec l'épaisseur de la sous-couche jusqu'à saturer.

3.3.8 Conclusion

Dans le cas d'une géométrie simple symétrique du duo de fissures, nous prédisons l'existence d'une taille W_2 stable entre deux fissures de deux façons :

- en appliquant le critère du maximum du taux de restitution d'énergie élastique de façon approchée en utilisant une modélisation de l'énergie élastique relâchée près du front de décollement.
- en appliquant le principe de symétrie locale par calcul numérique direct dans cette géométrie simple.

Nous avons déterminé les conditions de propagation de ce mode de rupture.

3.4 Fissures suiveuses : spirale et grand croissant

Considérons maintenant une fissure qui suit une découpe pré-existante, comme dans le cas des spirales et des grands croissants. Une difficulté supplémentaire vient de la forme du front de délamination qui joint la pointe de la fissure à la fissure pré-existante et doit maintenant être déterminée. Cette détermination d'une frontière libre par l'approche numérique semble difficile avec les outils standards. Nous adaptons l'approche énergétique développée dans le cas des duos de fissures (section 3.3.1) en faisant des hypothèses supplémentaires pour simplifier la géométrie du front. Nous ne nous attendons donc pas à obtenir un accord quantitatif avec l'expérience mais nous cherchons néanmoins à montrer l'existence d'une taille stable (section 3.4.1). Nous utiliserons ce modèle pour comparer le chemin des fissures aux expériences sur quelques

cas intéressants (section 3.4.2) : spirales et grands croissants.

3.4.1 Une taille stable : critère du maximum du taux de restitution d'énergie

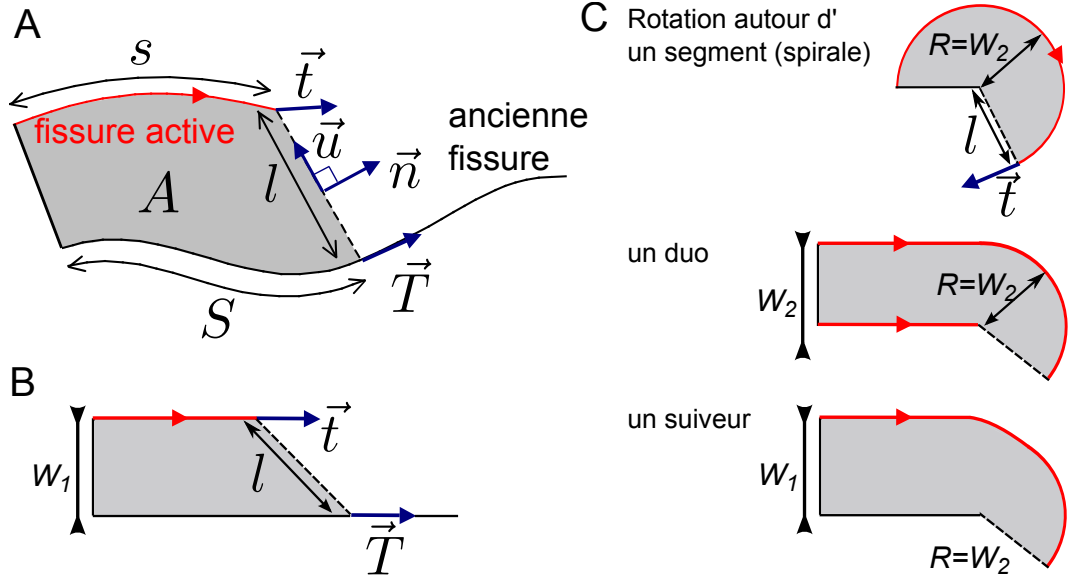


FIGURE 3.24: (A) Schéma de propagation des fissures et du front de délaminage pour une fissure suiveuse. Une fissure se propage en suivant une fissure pré-existante. L'ancienne fissure (respectivement la nouvelle fissure) est définie par son chemin S (resp. s) et son vecteur tangent local \vec{T} (resp. \vec{t}). \vec{u} et \vec{n} définissent les directions tangente et normale au front de délaminage de longueur l . (B) Cas particulier d'une fissure suivant un segment droit. (C) Une fissure tournant autour d'un segment droit à une distance W_2 (initiation des spirales), tournant autour d'un point fixe en conservant la taille d'interaction pour un duo, en la diminuant vers W_2 pour une fissure suiveuse.

Le front de délaminage connecte la pointe de fissure d'abscisse s au point d'abscisse S le long de la fissure pré-existante (figure 3.24A). Faisons l'hypothèse que le front de délaminage est un segment droit de longueur l , dont la normale et la tangente sont dénommées \vec{n} et \vec{u} . L'énergie élastique relâchée est maintenant $\mathcal{E}_r = eA + \gamma e h_f s + e f(l)$ où f tient compte de la contribution énergétique dans la région du film proche du front de délaminage. Nous supposons que f ne dépend que de l (ni de l'inclinaison du front de délaminage par rapport aux deux découpes ni de l'histoire des découpes) et qu'elle prend la même forme que dans le cas de la propagation d'un duo de fissures étudié précédemment : $f(l) = -\alpha e l^2 + \beta e h_f l$. Cette hypothèse forte est peu vraisemblable pour un front de délaminage formant un angle faible avec la

fissure pré-existante, mais est raisonnable lorsque cet angle est proche de 90° . Géométriquement, la variation d'aire s'écrit maintenant $2dA = l\vec{n} \cdot (\vec{t}ds + \vec{T}dS)$ tandis que celle du front de délaminage devient $dl = \vec{u} \cdot (\vec{t}ds - \vec{T}dS)$, où \vec{T} et \vec{t} correspondent respectivement à la tangente locale de l'ancienne et de la nouvelle fissure. Le bilan énergétique de la relation de Griffith est modifié pour tenir compte du fait qu'une seule fissure se propage $d\mathcal{E}_r = \Gamma dA + G_ch_f ds$. Nous obtenons ainsi :

$$(C\vec{n} - D\vec{u}) \cdot \vec{T} dS + [(C\vec{n} + D\vec{u}) \cdot \vec{t} - (G_c - \gamma e)h_f] ds = 0, \quad (3.15)$$

avec $C = (e - \Gamma)l/2$ et $D = ef'(l) = \beta eh_f - 2\alpha el$.

Comme S et s sont deux variables indépendantes, les deux termes de l'équation 3.15 doivent s'annuler. La géométrie du front (c'est à dire la position du point S) est imposée par la première équation :

$$(C\vec{n} - D\vec{u}) \cdot \vec{T} = 0 \quad (3.16)$$

La seconde équation, équivalente à la condition de Griffith, dicte les conditions de propagation de la fissure :

$$\gamma eh_f + (C\vec{n} + D\vec{u}) \cdot \vec{t} = G_ch_f, \quad (3.17)$$

Selon le critère du maximum du taux de restitution d'énergie potentielle, la fissure se propage donc dans la direction qui maximise G . Nous obtenons ainsi :

$$\vec{t} \text{ parallèle à } (C\vec{n} + D\vec{u}). \quad (3.18)$$

Les équations 3.16, 3.17 et 3.18 donnent l'évolution du chemin de fissures et la condition de propagation dans le cas général. Nous nous appuyons sur deux cas limites de ces équations pour étudier la sélection d'une taille dans deux géométries simples : une fissure suivant un segment droit (figure 3.24B) ou tournant autour d'un point (figure 3.24C).

Fissure suivant un segment droit

Pour décrire une fissure suivant une ligne droite, nous imposons que $\vec{t} = \vec{T} = \text{cst}$ (figure 3.24B). Nous obtenons ainsi $C = -D = (G_c - \gamma e)h_f/\sqrt{2}$, et le front de délaminage se propage à 45° de la fissure pré-existante. Comme dans le cas de la propagation d'un duo, il n'existe de solution droite que pour une certaine distance entre les deux fissures : la largeur entre deux fissures W_1 est donc sélectionnée. Expérimentalement, cette dépendance est observée. Cependant la sélection de l'angle de délaminage à 45° n'est pas systématique et nous observons des propagations présentant de larges variations de l'angle sélectionné. La largeur de la bande délaminée W_1 et la vitesse de propagation

v est fixée par $\Gamma(v) = \Gamma_1$ où :

$$W_1 = \frac{\beta h_f}{2\alpha} \left(\frac{1}{\sqrt{2}} + \frac{G_c/e - \gamma}{2\beta} \right) \quad (3.19)$$

$$\frac{\Gamma_1}{e} = 1 - \left(\frac{G_c}{e} - \gamma \right) \frac{h_f}{W_1} \quad (3.20)$$

Expérimentalement, la taille d'interaction observée W_1 varie linéairement avec l'épaisseur de la couche et est légèrement supérieure à $W_2 = \beta/(2\alpha)h_f$. Comme $1/\sqrt{2}$ est inférieur à 1, cette observation est compatible avec le modèle si le facteur $(G_c/e - \gamma)$ varie peu dans la gamme étudiée.

Fissure autour d'un point

Autour d'un point (ou à la fin d'un segment interrompu), il existe une trajectoire de fissure circulaire avec $\vec{t} \cdot \vec{u} = D = 0$ (figure 3.24C). La propagation circulaire n'est possible que pour un unique rayon sélectionné pour lequel le rayon de courbure est égal à la distance W_2 déterminée pour un duo de fissures. La vitesse de propagation est également identique ($\Gamma(v) = \Gamma_2$). Expérimentalement, nous observons bien une diminution de la taille d'interaction de W_1 vers W_2 lorsqu'une fissure suiveuse tourne à la fin d'un segment interrompu. Lorsqu'une fissure tourne à partir d'un duo, le rayon de courbure sélectionné conserve la distance d'interaction W_2 .

3.4.2 Un modèle simple pour décrire la propagation des fissures.

Dans cette section, nous comparons les trajectoires prédites par les équations 3.16 et 3.18 à plusieurs cas observés dans les expériences. Nous allons tester le modèle en imposant les géométries initiales permettant la propagation d'une spirale ou d'une allée de croissants. Nous décrivons le calcul de la trajectoire des fissures en Annexe de ce chapitre (section 3.9)

Spirale

Les spirales s'amorcent sur des défauts localisés dans le film (souvent une poussière). Autour de ce défaut, le film présente une sur-épaisseur très locale permettant la propagation initiale d'un court segment de fissure isolée. Un front de délamination se propage à partir de cette ligne initiale et la propagation collaborative démarre. En fonction de la forme du défaut initial, nous observons la propagation de spirales à une, deux, trois ou N branches (figure 3.26).

Nous simulons la propagation d'une spirale à partir d'un défaut initial imposé (un petit segment de fissure isolée se propageant à partir d'un défaut ponctuel) avec les mêmes paramètres α et β que précédemment (fi-

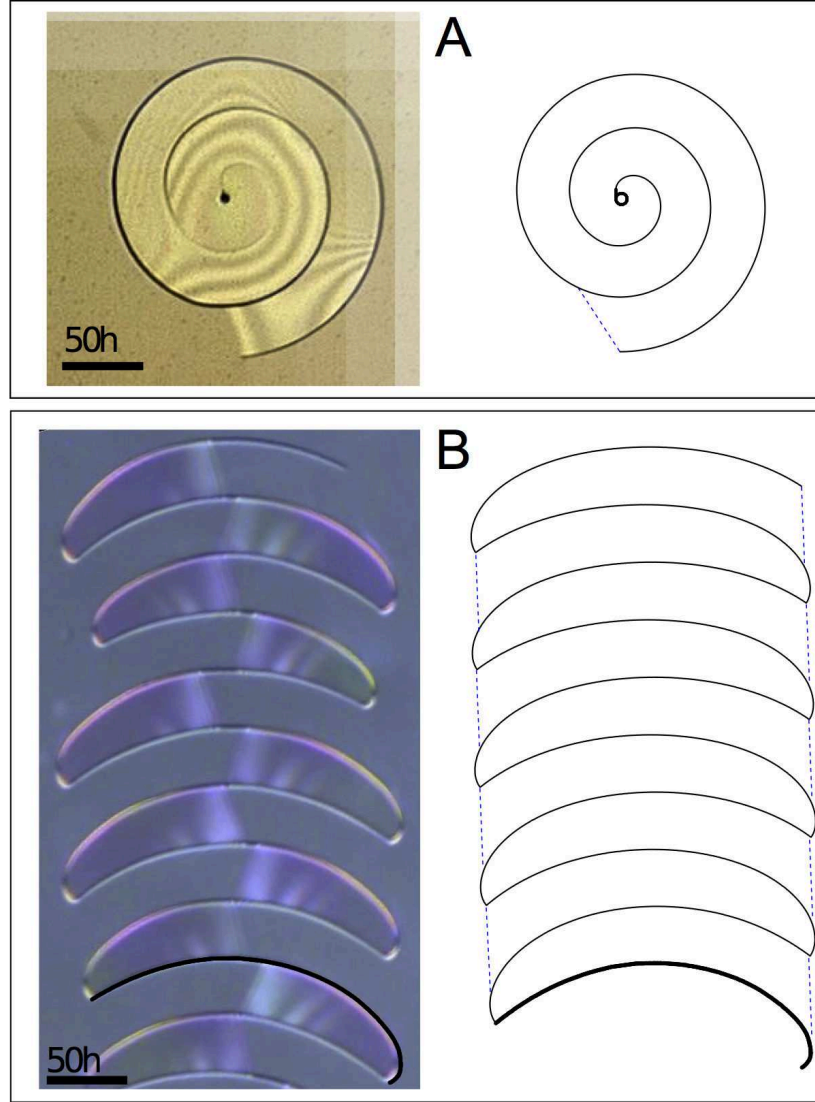


FIGURE 3.25: Comparaison des situations expérimentales avec les prédictions des équations (3.16-3.18) avec ($\alpha = 0.025, \beta = 1.26$) à partir d'une fissure initiale de géométrie imposée (représentée par la ligne solide noire). Le front de délamination est tracé en ligne pointillée. (A) Une spirale se développe à partir d'un défaut localisé. ($\gamma e/G_c; e/\Gamma$) vaut (0.45 ; 2.1) dans les expériences et (0.31 ; 1.94) dans le calcul théorique. (B) Une allée de croissants se propage à partir de conditions initiales extraites du chemin de fissure expérimental. ($\gamma e/G_c; e/\Gamma$) vaut (0.57 ; 1.75) dans l'expérience (0.32 ; 1.07) dans la théorie.

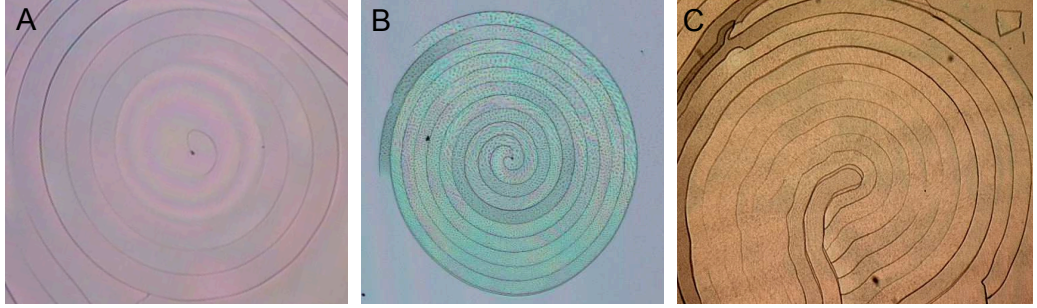


FIGURE 3.26: (A) Propagation de fissures en spirales à une branche (A), deux branches (B) ou N fissures tournant autour d'un duo formant une spirale à N branches (C).

gure 3.25A)). Les chemins de fissures prédits par le modèle forment spontanément une spirale qui correspond parfaitement à l'observation expérimentale. Ceci est dû au fait que la fissure suiveuse tend à reproduire la trajectoire qu'elle suit à une distance W . Les tailles sélectionnées par les fissures qui suivent une courbure nulle ($W = W_2$) et une courbure infinie ($W = W_1$) sont très similaires comme nous l'avons vu au paragraphe précédent. La dépendance de W avec la courbure de la fissure suivie est donc faible et nous obtenons des spirales pratiquement archimédiennes.

La propagation des spirales nécessite que $\Gamma_1 > \Gamma_0$ (cas limite d'une courbure nulle au bout d'un grand nombre de tours) mais leur amorçage est plus restrictif : la fissure doit tourner autour du défaut initial ce qui impose que $\Gamma_2 > \Gamma_0$. Des variations locales de l'adhésion du film avec le substrat entraînent des variations de la vitesse de propagation de la fissure. Nous observons que la fissure accélère et ralentit dans les mêmes secteurs angulaires à chaque tour : nous interprétons ces variations de vitesse par des inhomogénéités d'adhésion. Ces inhomogénéités n'influent pas sur la taille d'interaction (qui est fixée par des considérations élastiques) mais influent sur la vitesse de propagation (c'est à dire sur la distance au seuil de propagation).

Grands croissants

Les grands croissants se propagent à partir de longs défauts initiaux. Nous simulons une propagation de croissants à partir d'un défaut initial en forme de croissant observé dans les expériences (figure 3.25B). La fissure suit la fissure précédente à la distance W_1 sous la condition $\Gamma_1 > \Gamma_0$. Lorsque la fissure arrive au bout du segment interrompu de la fissure précédente, l'énergie élastique relâchée lors de la propagation chute car la fissure doit tourner autour d'un point singulier (condition $\Gamma_2 > \Gamma_0$). Si $\Gamma_1 > \Gamma_0 > \Gamma_2$, la propagation autour du point est énergétiquement impossible. La fissure s'arrête alors au bout du segment précédent, ce qui est observé expérimentalement (figure 3.7). Dans

les expériences, le front de délamination se propage alors lentement derrière la nouvelle branche du croissant (voir figure 3.7). Au delà d'un seuil de décollement de ce front, la propagation de la fissure reprend. La nouvelle fissure ne tourne donc pas autour de la fissure précédente mais le front de délamination en grandissant lentement, permet la propagation de retour de la branche suivante. Nous nous attendons donc à observer la propagation des motifs de grands croissants sous la condition $\Gamma_1 > \Gamma_0 > \Gamma_2$.

Les fissures oscillantes sont illustrées dans la figure 3.25B où elles sont simulées sous ces conditions. Contrairement à la propagation robuste de la spirale ou des duos de fissures, des valeurs différentes de e/Γ conduisent à des changements qualitatifs du motif prédit (amplitude divergente ou convergente, qui sont également observées dans l'expérience). Nous obtenons des propagations à amplitude constante comme illustrées sur la figure 3.25B seulement pour des valeurs particulières de Γ_0 . Si le modèle explique bien la forme des branches successives, le scénario que nous proposons pour l'arrêt de la fissure et la propagation de retour d'une nouvelle branche n'est visiblement pas complet. Les motifs expérimentaux sont en effet plus robustes que notre description ne le suggère. Nous reviendrons sur la selection du rapport d'aspect dans la section 4.4.

3.4.3 Conclusion

Nous avons étendu notre modélisation énergétique de la propagation d'une fissure collaborant avec le front de délamination pour le cas d'une fissure suivieuse. Une taille d'interaction stable W_1 existe et est compatible avec la variation linéaire avec l'épaisseur observée dans l'expérience. Nous avons proposé un modèle simple permettant de prédire les chemins de propagation de la fissure à partir d'une condition initiale imposée. Le chemin de fissure calculé reproduit la diversité des géométries obtenues expérimentalement avec une grande fidélité vue la simplicité des règles imposées. Nous cherchons maintenant à déterminer sous quelles conditions énergétiques les différents motifs se propagent.

3.5 Diagramme de configuration : zoom

Trois ingrédients physiques gouvernent la sélection des différents modes de propagation : l'énergie élastique résiduelle e , l'énergie de fissure du film G_c et l'énergie interfaciale à vitesse nulle Γ_0 . Dans nos expériences, nous pouvons varier e et Γ_0 indépendamment en ajustant l'épaisseur du film et le traitement chimique du substrat, tandis que G_c est fixé par le système. La figure 3.27 présente les morphologies de fissures en fonction de deux paramètres adimensionnés, $\gamma e/G_c$ and e/Γ_0 . Nous explorons le diagramme de phase sur des lignes droites passant par l'origine en augmentant l'épaisseur du film mince pour une énergie d'adhésion donnée, déterminée par l'expérience du cut-test.

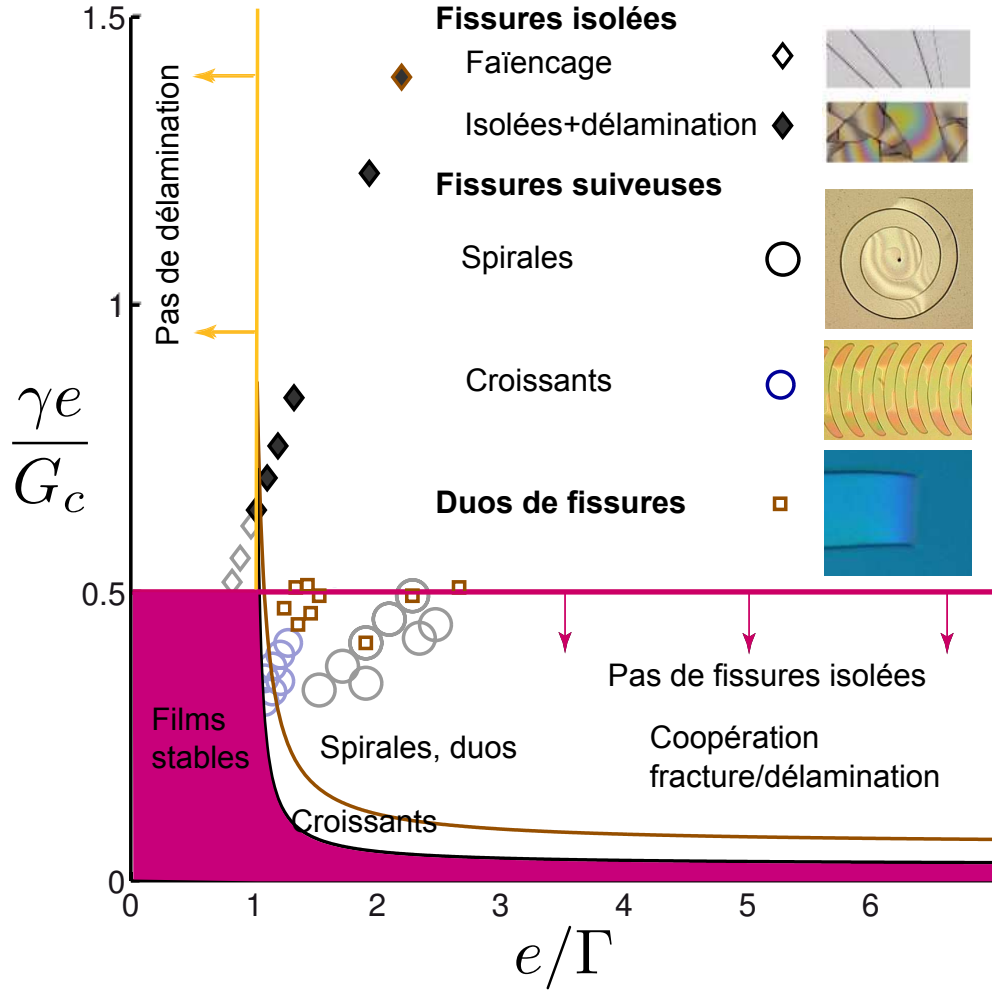


FIGURE 3.27: Diagramme de configuration des différents motifs observés dans le plan $(\gamma e/G_c, e/\Gamma_0)$ où e est la densité d'énergie par unité de surface, G_c et Γ_0 sont les énergies de rupture du film et de l'interface à vitesse nulle. Les deux frontières $\gamma e/G_c \geq 0.5$ (ligne horizontale mauve) et $e/\Gamma_0 \geq 1$ (ligne verticale jaune) définissent les régions où la délamination est impossible (gauche de la ligne verticale) et où les fissures du film sont impossibles selon les critères classiques (en-dessous de la ligne horizontale). Cependant le mode de fissure collaboratif est observé en-dessous de cette ligne. Les duos de fissures (carrés bruns) et les spirales (cercles noirs) sont observés pour $\Gamma_2 > \Gamma_0$ (au-dessus de la ligne brune). Des allées de croissants (cercles bleus) sont observés pour $\Gamma_1 > \Gamma_0 > \Gamma_2$ (entre les lignes brunes et noires) en accord avec notre description théorique. Les fissures isolées (losanges noirs) se propagent au-dessus de la ligne horizontale.

Les lignes solides jaune et magenta correspondent aux conditions classiques de stabilité du film mince. La propagation d'une fissure isolée est possible pour $\gamma e/G_c \geq 0.5$ (au-dessus de la ligne horizontale magenta), celle d'une fissure d'interface autour de défauts pour $e/\Gamma_0 \geq 1$ (à droite de la ligne verticale jaune). Expérimentalement, nous observons la propagation de fissures isolées dans le quadrant supérieur gauche du diagramme de phase et la propagation de fissures isolées suivies de délamination dans le quadrant supérieur droit.

Néanmoins la propagation de fissures en-dessous de la ligne magenta est possible si la délamination et la fissure coopèrent. Deux autres limites sont introduites pour décrire les conditions de propagation des modes coopératifs. Au dessus de la courbe brune ($\Gamma_0 = \Gamma_2$), la propagation de duos de fissures se propageant simultanément (équation 3.14) est énergétiquement possible. Les fissures suivant une fissures pré-existante peuvent se propager au dessus de la courbe noire où $\Gamma_0 = \Gamma_1$ (équation 3.20). Aucune propagation de fissures n'est possible en-dessous de cette frontière (pour $\Gamma_0 > \Gamma_1$) qui définit une nouvelle condition de stabilité des films minces. Dans tous les cas, une taille optimale est respectivement sélectionnée et définie par les Eqs. 3.8 et 3.20.

Nous observons la propagation des duos de fissures (carrés bruns) et de spirales (cercles noirs) pour $\Gamma_2 > \Gamma_0$. La propagation des croissants de grand rapport d'aspect (cercles bleus) a lieu entre les deux frontières $\Gamma_1 > \Gamma_0 > \Gamma_2$. En effet, les croissants se propagent sans possibilité de tourner autour des points singuliers (cette condition $\Gamma_0 > \Gamma_2$ est équivalente à la condition de propagation de duos). Notons que les différents états sont possibles pour un même jeu de paramètres. Une classification précise des morphologies obtenues nécessite une connaissance fine du processus de nucléation.

3.6 Interaction de plusieurs fissures

Que se passe-t-il lorsque plusieurs fissures interagissent ? Nous présentons une situation expérimentale courante obtenue à partir d'un défaut initial en triangle : la course entre une fissure suiveuse et un duo de fissures. Lorsque la fissure suiveuse rattrape le duo, nous observons l'apparition de motifs en dunes caractérisés par une longueur d'onde très régulière. Dans un système présentant des défauts, l'observation chronologique de la propagation des fissures permet de comprendre la sélection des tailles entre fissures.

3.6.1 Trois fissures

Course entre une fissure suiveuse un duo de fissures.

Observons la propagation à partir d'une géométrie initiale extraite de l'expérience. Deux fissures se propagent d'abord simultanément en formant un duo, à partir d'un défaut en étoile à trois branches à 120° (figure 3.28A). Une troisième fissure suiveuse nucléée plus tard à partir de la troisième branche du

motif initial et tourne autour du duo. Les tailles sélectionnées et l'angle de propagation du front de délaminage prédites par le modèle (figure 3.28B) sont en bon accord avec l'expérience. Notons que l'angle du front de délaminage de la fissure suiveuse (à 45° dans le modèle) n'est pas parfaitement respecté dans l'expérience. Comme W_1 défini dans l'équation 3.19 est plus grande que W_2 défini dans l'équation 3.8, l'aire balayée par la fissure suiveuse est plus grande que l'aire balayée par le duo. L'énergie relâchée pour le décollement est donc plus importante, sa propagation est plus rapide et la fissure suiveuse rattrape le duo.

À ce moment, la fissure centrale semble s'apparier plutôt avec la fissure du haut, qui est plus rapide et forme un duo. Comme ce nouveau couple de fissures a une largeur W_1 supérieure à W_2 , les deux fissures se rapprochent et la fissure centrale est déviée vers le haut de l'image. La troisième fissure peut alors se propager en mode suiveuse (avec une largeur W_1) et rattrape le nouveau duo : le scénario s'inverse conduisant à la formation d'oscillations (figure 3.29).

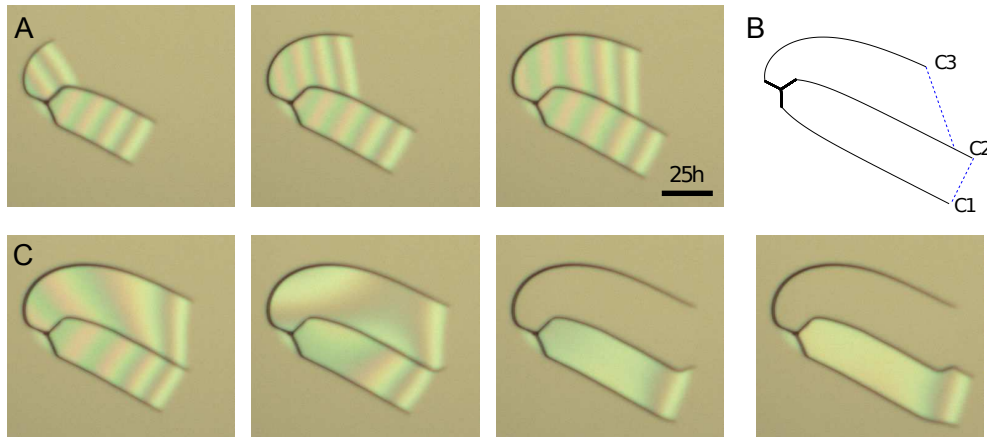


FIGURE 3.28: A, Propagation expérimentale de trois fissures qui s'amorcent à partir d'un défaut triangulaire à 120° . B, Numériquement, nous imposons une condition initiale conforme à l'expérience (représentée par la ligne solide noire). $C1$ et $C2$ se propagent initialement (solution de propagation d'un duo de fissures Eqs. 3.6-3.7), puis la fissure $C3$ se propage en suivant les équations (3.16-3.18), plus rapidement en suivant la fissure existante $C2$. $(\gamma e/G_c; e/\Gamma)$ vaut $(0.49; 1.24)$ dans l'expérience et $(0.24; 1.29)$ dans la théorie. Les fronts de délaminage sont tracés en ligne pointillée bleue. C, Lorsque la fissure suiveuse rattrape le duo, la fissure centrale est déviée vers le haut. Le scénario s'inverse alors.

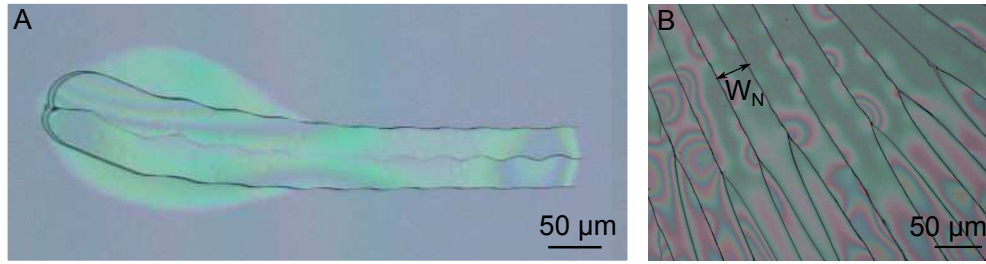


FIGURE 3.29: (A) Dunes obtenues lors de l'interaction de trois fissures : la fissure centrale oscille tandis que les deux fissures extérieures se propagent quasiment en lignes droites. (B) Un grand nombre de fissures se propage simultanément en sélectionnant une taille d'interaction W_N . Parfois de telles structures branchent simultanément.

Dunes

En réalité, le scénario séquentiel présenté plus haut n'est pas souvent observé mais nous avons une interaction simultanée à trois fissures qui peut s'interpréter en gardant en tête notre première idée simplifiée. Lorsque les trois fissures interagissent, nous observons des oscillations entre les deux positions d'équilibre W_1 et W_2 du chemin de la fissure du milieu, les deux fissures extérieures se propageant quasiment en ligne droite (figure 3.29A) conduisant à un motif caractéristique que nous appelons 'dunes'. Observons la position des trois fissures au cours de la propagation (figure 3.30) : sur la première image, le front de délamination de la fissure suiveuse (en bas) rattrape la position de la fissure du milieu (en haut). Sur les quatre images suivantes, la fissure intermédiaire se rapproche de la fissure du bas pour atteindre la taille W_2 . Dans le même temps, la fissure supérieure, en situation de fissure suiveuse et dont le front de délamination augmente à mesure que la fissure du milieu s'éloigne, voit la vitesse de propagation du front de délamination accélérer. La fissure rattrape alors le duo et le cycle recommence. Pour mieux décrire l'interaction entre ces trois fissures et caractériser la longueur d'onde de l'oscillation, il est nécessaire de connaître la dépendance de la vitesse du front de délamination avec l'énergie relâchée lors de la propagation. Nous présenterons des mesures de cette dépendance dans le chapitre suivant. Nous pouvons par ailleurs nous interroger sur une possible situation d'équilibre satisfaisant la propagation des trois fissures simultanément à la même vitesse. Une telle solution serait-elle stable ?

3.6.2 Et pour N fissures ?

Expérimentalement, nous observons parfois un grand nombre de fissures se propageant simultanément. Nous n'avons pas caractérisé soigneusement ce mode de propagation. Nous observons cependant que la distance entre les fis-

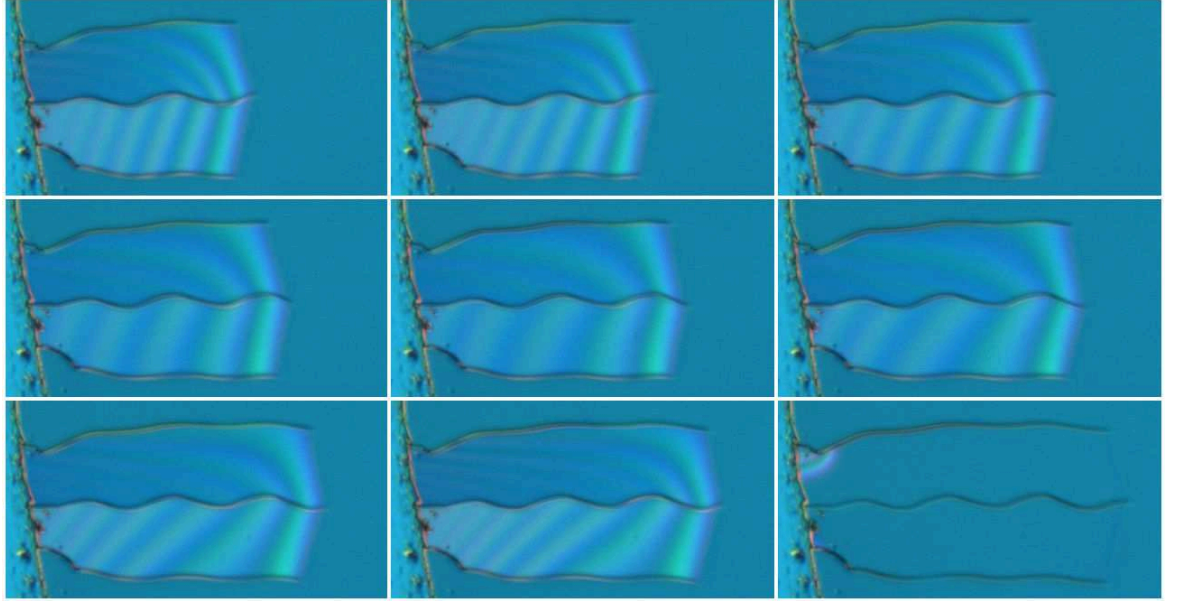


FIGURE 3.30: Lorsque trois fissures interagissent, nous observons la formation de structures en dunes dues à la compétition entre deux états d'équilibre (duos et fissures suiveuses).

sures se fixe pour une taille stable W_N (figure 3.29B). Selon notre modèle, cette taille doit être un peu différente de la taille de propagation des duos, l'énergie relâchée par la languette étant similaire au cas du duo mais la correction due à la courbure de la trajectoire étant différente (comme le film n'adhère pas au substrat en dehors de la bande décollée). La vitesse de propagation est plus importante que dans le cas de la propagation d'un duo de fissures. L'énergie de fracture nécessaire est en effet inférieure à celle de la propagation de duo, le critère de Griffith des duos (équation 3.14) étant modifié en $(e - \Gamma_0)W_N = G_c$. Parfois de telles structures branchent simultanément dans un mécanisme que nous n'avons pas étudié pour le moment (figure 3.29B).

3.6.3 Jouons avec W_1 et W_2 .

Dans un dernier exemple, nous présentons une expérience dans un film présentant des défauts qui illustre les différentes conditions de propagation que nous avons décrites dans le chapitre. Nous indiquons les distances d'interactions W_2 (ligne rouge) et W_1 (ligne verte) (figure 3.31A) qui apparaissent dans la figure finale. En regardant seulement cette image, il n'est pas aisé de déterminer comment la propagation s'est déroulée. Un duo (fissures 1+2) se propage initialement à une distance W_2 . Le duo est rattrapé par une fissure suiveuse (fissure 3) qui se propage plus vite et attire la fissure 2 vers une

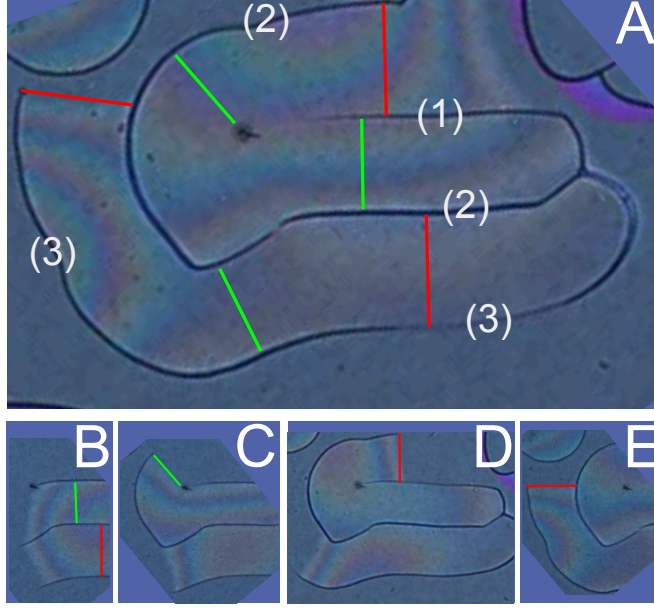


FIGURE 3.31: (A) Figure finale de propagation de fissures dans un film présentant des défauts. Les tailles d'interaction W_2 sont représentées par des lignes rouges, les tailles W_1 par des lignes vertes. (B-E) Les instants permettant de comprendre l'origine de ces tailles d'interaction sont isolés.

distance W_2 (figure 3.31B). Nous nous attendons alors à une propagation en dunes oscillantes entre W_1 et W_2 (décrites dans la section 3.6.1). La fissure 1 étant bloquée sur un défaut, le front les reliant tourne autour du défaut jusqu'à retrouver un rayon de courbure optimal W_2 (figure 3.31C). La fissure 2 se propage ensuite dans le sens inverse à une distance W_1 de la fissure 1 (figure 3.31D). La fissure 3 tourne enfin autour de la fissure 2 à une distance W_1 (figure 3.31E).

3.6.4 Sensibilité aux défauts.

Lorsqu'elle vieillit, la solution de SOG précipite en formant de petites particules solides dont la taille caractéristique est la centaine de nanomètres. Jusqu'à présent nous filtrons soigneusement la solution afin d'éviter de déposer ces impuretés dans la couche. Que se passe-t-il si nous ne filtrons pas la solution ? Le mode de propagation en fissure collaborative est-il conservé ou les fissures sont-elles trop perturbées par les défauts ?

Nous observons la propagation de fissures suivieuses dans des couches présentant de très nombreux défauts. Zoomons sur la propagation (figure 3.32B). La propagation locale est très perturbée par la distribution de défauts, les fissures se propagent d'un défaut à l'autre et le chemin de fissure est très

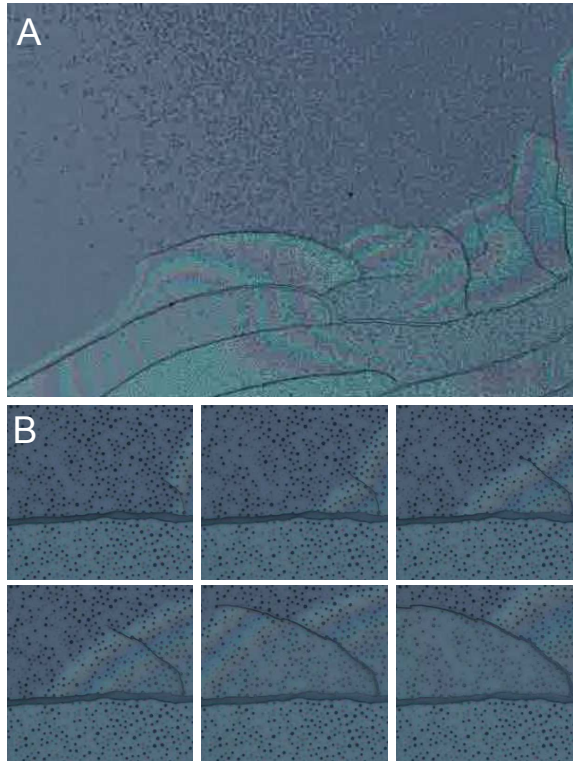


FIGURE 3.32: (A) Des fissures collaboratives peuvent se propager dans une couche présentant de nombreuses hétérogénéités de ténacité (dues à la présence de particules solides). (B) Une observation à petite échelle traduit cependant un chemin de fissure inhomogène.

discontinu. Néanmoins, le chemin de fissures global est toujours dicté par le front de délamination (figure 3.32A) et notre description de la sélection d'une taille élastique indépendante du chargement, des propriétés d'adhésion et des défauts demeure valide. Le mode de propagation décrit est donc très robuste et assez peu sensible aux défauts locaux de ténacité de la couche.

3.6.5 Conclusion

La sélection de deux largeurs caractéristiques, W_2 pour la propagation de duos de fissures et d'une fissure tournant autour d'un point fixe et W_1 pour la propagation de fissures suiveuses, conduit à la propagation de dunes oscillantes. Les caractéristiques de ces dunes nécessitent une étude plus fine de la vitesse de propagation des fissures. Nous présenterons des observations expérimentales concernant la dynamique dans le chapitre suivant.

3.7 Conclusions et prolongements

Un nouveau mode de propagation dans des films stables

Nous avons mis en évidence un nouveau mode de propagation de fissures dans un film mince sous tension à partir de l'observation en temps réel du phénomène : les fissures et le front de délamination se propagent simultanément et collaborent pour relacher l'énergie résiduelle du film. Cette coordination conduit à la propagation de structures auto-organisées présentant des caractéristiques inhabituelles en mécanique de la rupture : régularité géométrique et robustesse. Nous proposons de nouvelles conditions de stabilité, validées expérimentalement.

Sélection de deux tailles d'interaction entre fissures

La compétition entre effet de ligne et de surface lors de la propagation définit une taille stable d'interaction entre fissures. Elle est décrite simplement par notre modèle énergétique et confirmée numériquement par un calcul en éléments finis en appliquant le principe de symétrie locale. Nous décrivons en détail deux cas distincts : la propagation de deux fissures simultanées (duos) et d'une fissure suiveuse (spiraales et allées de croissants). Notre approche analytique simple permet de reproduire et d'interpréter les motifs de propagation observés expérimentalement à partir des défauts initiaux.

Contrôle de la propagation de fissures pour la fabrication à petite échelle.

Les motifs obtenus dans nos expériences ont déjà été rapportés dans un certain nombre de systèmes industriels sans qu'ils soient expliqués ou que leurs caractères inhabituels ne soient relevés. Les tailles caractéristiques observées dans ces différents systèmes sont compatibles avec nos prédictions. Bien que la propagation de fissures dans les films minces soit actuellement considérée par l'industrie comme conduisant à la ruine du matériau, la grande robustesse des motifs (figure 3.33) peut être utilisée comme un outil de design pour fabriquer des objets à petites échelles ou pour fonctionnaliser des surfaces (exposer seulement une partie précise d'un film pour des traitements de surface, utiliser les fissures comme canaux nanofluidiques ou produire des nano-objets). Le chemin de fissures est indépendant des inhomogénéités de fracture et d'adhésion (souvent difficiles à maîtriser à grande échelle). Les motifs se développent spontanément et sont contrôlés par la géométrie de l'amorçage si les conditions de propagation sont atteintes. Expérimentalement, le développement et le contrôle d'une telle technologie passe par une meilleure maîtrise de la nucléation des fissures. Une étude récente (Nam *et al.* (2012)) propose une méthode originale et prometteuse qui semble transférable à notre système expérimental. Les beaux motifs oscillants obtenus dans cette étude pour un système

présentant une très forte anisotropie sont d'ailleurs complètement inexpliqués à notre connaissance.

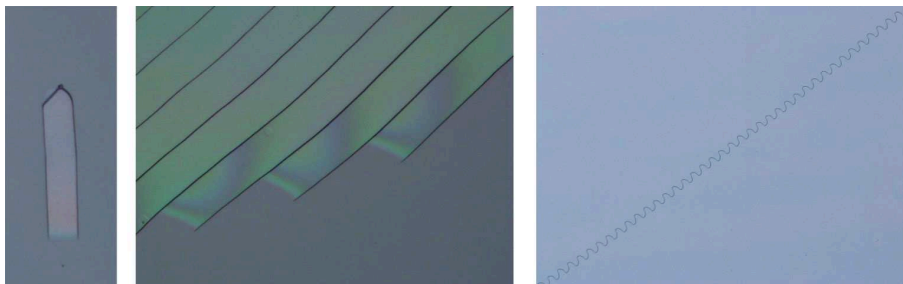


FIGURE 3.33: Les fissures comme un outil de fabrication d'objet à petites échelles.

Motifs et vitesse de propagation ?

Il reste cependant un certain nombre de questions ouvertes pour lesquelles nous apporterons quelques pistes de réponses dans le chapitre suivant. Comment la dynamique de la propagation est-elle fixée ? Lorsque les fissures isolées et le mode de propagation collaboratif sont tous deux possibles, quel mode est sélectionné ? D'autres motifs de fissures existent-ils pour des conditions de propagation particulières ?

3.8 Annexe expérimentale : caractérisation des couches de SOG

Nous caractérisons notre système expérimental en mesurant les contraintes résiduelles dans le film (3.8.1), les modules élastiques de la couche (3.8.2), l'énergie de fissure dans la couche et l'énergie d'adhésion entre la couche et le substrat (3.8.3).

3.8.1 Mesure des contraintes résiduelles

Nous mesurons la contrainte résiduelle emmagasinée dans le film par la méthode de Stoney en déposant une couche d'épaisseur connue sur un wafer de silicium (100) très fin (d'épaisseur $100\text{ }\mu\text{m}$). La courbure isotrope du wafer κ est mesurée à l'aide d'un profilomètre optique (figure 3.34). Pour un film contraint biaxialement, il faut écrire l'équilibre des forces F et des moments M pour relier la courbure du film aux contraintes résiduelles. Dans la limite d'un film mince devant l'épaisseur du substrat ($h_f \ll h_s$) :

$$\Sigma F = 0 \Rightarrow \sigma_f h_f - \sigma_s h_s = 0 \quad (3.21)$$

$$\Sigma M = 0 \Rightarrow \sigma_f h_f \frac{h_s}{2} - \frac{E_s h_s^3}{12(1 - \nu_s^2)} (\kappa_x + \nu_s \kappa_y) = 0 \quad (3.22)$$

En supposant une symétrie axiale, $\kappa_x = \kappa_y$, la courbure est directement reliée aux contraintes résiduelles dans le film par la loi de Stoney :

$$\sigma_f = \frac{E_s h_s^2 \kappa}{6 h_f (1 - \nu_s)} \quad (3.23)$$

où $E_s = 169\text{ GPa}$ et $\nu_s = 0.36$ sont les modules et les coefficients de Poisson du substrat du silicium. Pour des films de 0.68 , 0.9 et $1\text{ }\mu\text{m}$, nous mesurons des courbures respectives de 0.1 , 0.14 et 0.15 m^{-1} qui correspondent à une contrainte résiduelle de 55 MPa .

3.8.2 Détermination des modules élastiques

Le coefficient de Poisson du film est estimé en mesurant la variation d'épaisseur du film par microscopie à force atomique lorsque le film délamine du substrat. En comparant l'épaisseur du film lorsque les contraintes sont complètement relâchées à l'épaisseur du film contraint, nous observons une variation d'épaisseur de 6 nm pour un film d'une épaisseur initiale de $1\text{ }\mu\text{m}$ (figure 3.35C).

La variation d'épaisseur du film dans la direction z est reliée au coefficient de Poisson ν_f du film. À partir du calcul développé dans la section 2.4.1, nous obtenons :

$$\epsilon_{zz} = -2 \frac{\nu_f \sigma_0}{E} = 2 \frac{\nu_f}{1 - \nu_f} \epsilon_{xx} \quad (3.24)$$

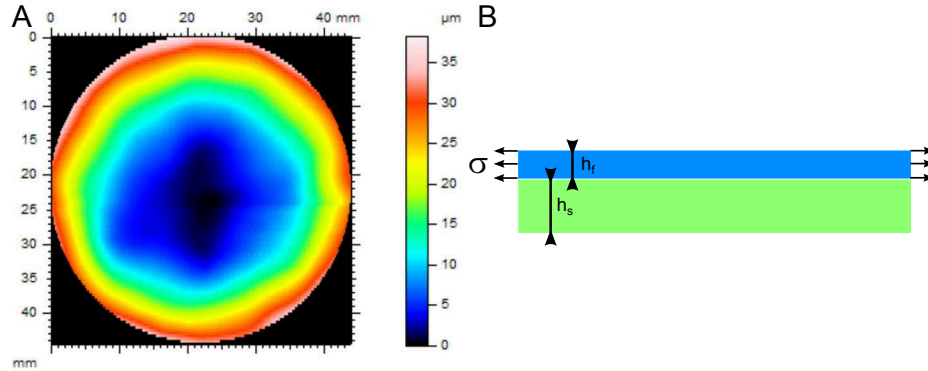


FIGURE 3.34: La contrainte résiduelle dans une couche de SOG est estimée en mesurant la déflexion d'un wafer fin de Silicium (A). La déflexion du wafer permet de remonter à la contrainte résiduelle σ par la méthode de Stoney (B).

Le coefficient de Poisson du film estimé par cette méthode est de 0.25 ± 0.05 . La variation d'épaisseur est un outil utile pour déterminer les zones du film qui se sont décollées lors de la propagation des fissures. Même lorsque celles-ci se recollent, nous observons les zones plus épaisses à l'AFM (figure 3.35A) ou par microscopie optique à contraste de phase (figure 3.35B).

Le module de Young de la couche ($E_f = 4GPa \pm 3$) est mesuré par nanoindentation (Agilent -MTS XP) pour des couches de $1.7 \mu m$ d'épaisseur déposées sur des substrats de silicium. L'incertitude de mesure est due à la faible épaisseur de la couche. La taille caractéristique du contact est en effet rapidement comparable à l'épaisseur de la couche. Nous sondons alors le module de Young du substrat qui est beaucoup plus rigide que celui du film. Une autre difficulté est que la couche peut délaminer ou flamber à proximité de l'indent. Nous ne pouvons décorrélérer ces sources de dissipation de la réponse élastique du sol-gel et nous ne considérons donc pas les courbes de charge correspondantes. La déformation calculée à partir de la mesure des contraintes résiduelles est donc d'environ 1,4%. Cette valeur de déformation est confirmée lors de la mesure du champs de déplacements du film par corrélation d'image (section 3.3.2). Les épaisseurs de couches sont déterminées par profilométrie de contact (Dektak), par microscopie à force atomique (AFM) ou en coupe au microscope FEG-SEM. Les images en tranche des motifs de rupture réalisées au FEG (figure 3.36) mettent en évidence des couches homogènes dans l'épaisseur sans direction privilégiée apparente.

3.8.3 Énergie de fissure du film et énergie d'adhésion.

Lorsque l'adhésion entre la couche et le substrat est grande, nous observons des motifs de fissures classiques en faïencage. Les films fins restent stables tandis que les films plus épais se fissurent. Nous déterminons expérimentalement

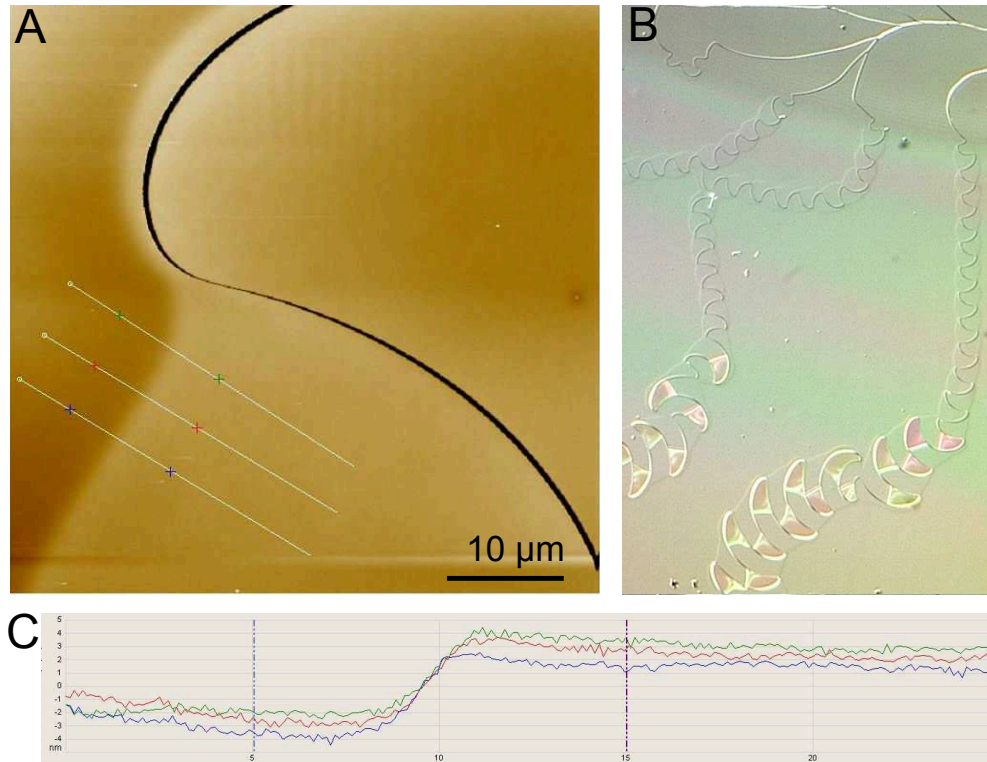


FIGURE 3.35: Lorsque les contraintes résiduelles des couches sont relâchées, ces dernières changent d'épaisseur. Cette variation est visible sur les images par microscopie par force atomique (A) ou par microscopie optique à contraste de phase (B) pour des couches recollées. Les profils des lignes représentés sur l'image AFM font apparaître des variations d'épaisseur de 6 nm (C).

l'épaisseur critique $h_c = 1.8 \mu\text{m}$ pour que les fissures se propagent à partir d'une amorce. Connaissant l'énergie résiduelle de la couche, nous obtenons une valeur de l'énergie de fissure du film $G_c = 2\gamma h_c \sigma^2 (1 - \nu)/E = 1.5 \pm 0.2 \text{ N/m}$ où la constante $\gamma = 0.070$ est obtenue numériquement par éléments finis en tenant compte des contrastes de module de Young entre la couche et le substrat.

Nous pouvons également modifier l'énergie d'adhésion Γ en décorant la surface du substrat de silicium. Nous déposons de fines couches de différentes natures chimiques : film de SOG, de MTEOS, de TEOS, couches moléculaires de silane, traitement par plasma. Le choix du traitement de surface est délicat. En effet, une interface trop hydrophobe (silane de type OTS par exemple) ne permet pas le dépôt d'une couche de SOG par spin-coating la solution étant complètement évacuée lors de la rotation du substrat.

L'énergie d'adhésion est mesurée à partir de la forme du front de délamination autour d'un défaut droit. Comme nous l'avons vu dans la section 2.4.2, l'extension du front de délamination dépend des propriétés élastiques

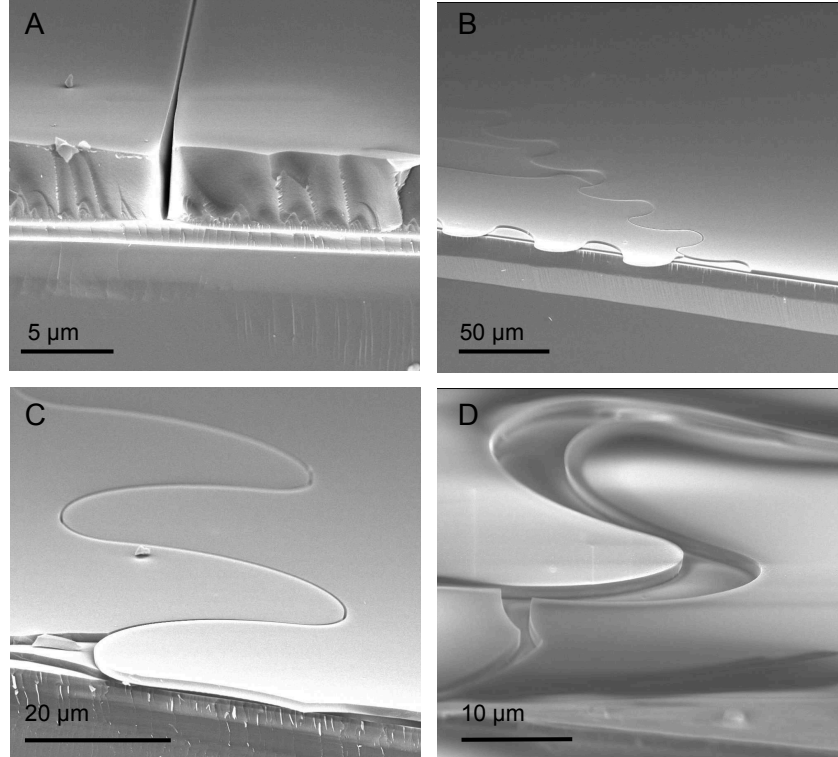


FIGURE 3.36: Images FEG d'une fissure isolée (A) dans un film de SOG de $4\ \mu\text{m}$ d'épaisseur et d'allées de croissants (B-D) dans un film de $955\ \text{nm}$. Les images des structures en forme de croissants font apparaître un front de fissure quasi normal à la surface du film.

du matériau, des contraintes résiduelles biaxiales dans le film σ et de l'énergie d'adhésion de l'interface Γ . Lorsque l'amplitude du décollement est plus grande que 3 à 5 fois l'épaisseur de la couche, le taux de restitution ne dépend plus de la longueur du front (figure 2.11a). En supposant un défaut de taille finie $2L$ grand devant l'épaisseur du film chargé biaxialement avec une contrainte résiduelle σ , nous prédisons une transition continue entre un régime où l'énergie d'interface est trop grande pour permettre le décollement de la couche (figure 2.11(a) gauche) et celui où la couche est complètement décollée sur une taille caractéristique du défaut L (figure 2.11(a) droite). Dans le premier cas, la contrainte résiduelle est inférieure à $\sigma_i = \frac{E\Gamma}{(1-\nu^2)h_f}$. Dans le second elle est supérieure à $\sigma_c = \frac{2E\Gamma}{(1-\nu^2)h_f}$. La forme du front dépend de trois paramètres ζ , λ et du coefficient de Poisson ν (Jensen *et al.* (1990)). $\zeta = \frac{\sigma}{\sigma_c}$ est le rapport entre la contrainte résiduelle dans le film et la contrainte critique associée au délaminage en régime permanent, λ est un paramètre qui prend en compte l'influence du mode 3. Les fronts observés expérimentalement sont comparables aux prédictions théoriques pour $\lambda = 0$, suggérant une faible in-

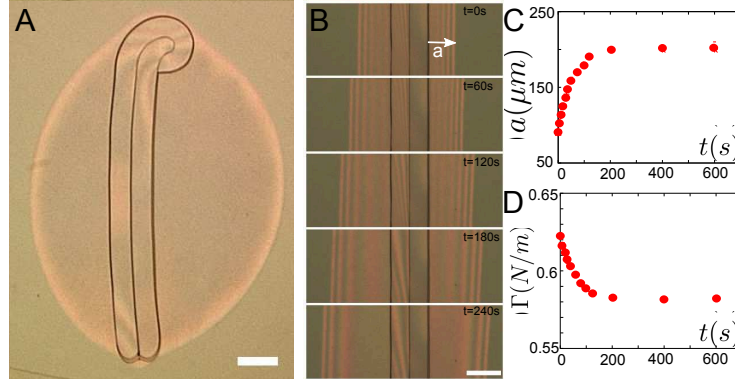


FIGURE 3.37: (A-B) Mesure de l'énergie d'adhésion : la délamination progressive du film autour d'une fissure droite est observée en fonction du temps (échelle $100\mu m$). (C) Évolution de l'extension de la région délamainée a en fonction du temps. (D) L'énergie correspondante de délamination déterminée à partir de la forme du front décroît progressivement jusqu'à atteindre une valeur plateau Γ_0 .

fluence du mode 3 dans notre cas. Sous cette condition, le rapport d'aspect de la zone délamainée est seulement une fonction de ζ ce qui permet de déterminer l'énergie d'adhésion $\Gamma = \frac{\sigma^2(1-\nu^2)h_f}{2E\zeta}$. Nous mesurons le rapport d'aspect du front de délaminage autour de défauts droits une fois la propagation du décollement terminée. La valeur de l'énergie d'adhésion Γ_0 est ainsi obtenue pour une vitesse de délamination nulle. En changeant les propriétés chimiques de l'interface, nous obtenons cinq valeurs d'énergies interfaciales distribuées entre $0.35 J/m^2$ et $0.8 J/m^2$.

Nous observons que l'énergie d'adhésion Γ dépend du temps ou de la vitesse de délamination du front. L'énergie dissipée lors de la propagation de la fissure interfaciale augmente lorsque nous augmentons la vitesse de sollicitation. Cette observation est compatible avec une dissipation viscoélastique ou par diffusion d'une espèce réactive en pointe de fissure. La forme de cette dépendance est discutée plus en détail dans la section 4.2. Nous obtenons des énergies d'adhésion à vitesse nulle de $\Gamma_0 = 0.45 N/m$ pour un film de MTEOS, de $0.3 N/m$ pour un film de SOG ancien (20 mois après ouverture), de $0.8 N/m$ pour un film de TEOS ou pour un dépôt sur une couche atomique de silane méthylé, de $0.55 N/m$ ou $0.6 N/m$ pour un film de SOG récent, de $1.3 N/m$ pour un dépôt direct sur le wafer de silicium.

3.9 Annexe : Prédiction numérique du chemin de fissures.

Nous présentons ici le calcul de la trajectoire d'un duo de fissure ou celle d'une fissure suiveuse étant donnée la trajectoire de la fissure plus ancienne sur laquelle elle s'appuie.

3.9.1 Duo de fissures

Dans le cas de duo de fissures, la résolution des équations (3.6) et (3.7) peut être conduite analytiquement. Nous choisissons d'adimensionner les distances par h_f , en notant par exemple $\bar{W} = W/h_f$, et les densités surfaciques d'énergies par e , $\bar{\Gamma} = \Gamma/e$. Pour simplifier nous noterons

$$\bar{G}_c = G_c/e - \gamma.$$

de sorte que les equations deviennent

$$\frac{d\bar{W}}{d\bar{s}} = 2 \sin \theta = \frac{4\alpha}{\bar{G}_c} (\bar{W}_2 - \bar{W}) \quad (3.25)$$

$$\bar{W}(1 - \bar{\Gamma}) = 2\bar{G}_c \quad (3.26)$$

En effet, si la distance entre les deux fissure est W_0 pour $s = 0$, alors, en remarquant que $2 \sin \theta = dW/ds$, nous trouvons que

$$\bar{W}(s) = \bar{W}_2 + (\bar{W}_0 - \bar{W}_2) \exp\left(-\frac{4\alpha}{\bar{G}_c} \bar{s}\right)$$

C'est une relaxation exponentielle de la distance inter-fissure vers la valeur W_2 , avec une distance typique de relaxation $\ell = (G_c/e - \gamma)h_f/4\alpha$.

3.9.2 Fissure suiveuse

Dans le cas d'une fissure suiveuse, nous devons résoudre numériquement les équations, qui sous forme adimensionnées décrivent la propagation

$$(\bar{C}\bar{n} - \bar{D}\bar{u}) \cdot \bar{T} = 0 \quad (3.27)$$

$$(\bar{C}\bar{n} + \bar{D}\bar{u}) \cdot \bar{t} = \bar{G}_c. \quad (3.28)$$

avec $\bar{C} = (1 - \bar{\Gamma})\bar{l}/2$ et $\bar{D} = \beta - 2\alpha\bar{l}$. La propagation, qui a lieu dans la direction

$$t = \frac{\bar{C}\bar{n} + \bar{D}\bar{u}}{\sqrt{\bar{C}^2 + \bar{D}^2}} \quad (3.29)$$

n'est donc possible que si

$$\bar{C}^2 + \bar{D}^2 = \bar{G}_c^2 \quad (3.30)$$

Spirale

Dans le cas de la spirale, la propagation est continue, de sorte que la condition (3.30) est supposée toujours satisfaite.

La résolution sous matlab consiste en l'itération d'une séquence de 2 étapes :

- détermination de la position du front (équation 3.27). Nous partons d'un point quelconque sur la trajectoire ancienne, que nous prenons comme extrémité possible du front de délamination. Si \bar{D} est déterminé par la géométrie, c'est la condition de propagation (3.30) qui permet d'obtenir \bar{C} . On peut en déduire le produit scalaire $(\bar{C}\bar{n} - \bar{D}\bar{u}) \cdot \bar{T}$, qui représente l'énergie relâchée lors de l'avancée du front déduite de l'énergie d'adhésion. En fonction du signe de cette quantité on fait donc avancer ou reculer la position du front, jusqu'à finalement obtenir la position qui satisfait l'équation (3.27). Lorsque cette étape est terminée on peut procéder à la
- détermination de la direction de propagation, donnée par (3.29). Nous avançons alors d'une petite quantité la trajectoire dans cette direction. Pour la détermination du front au pas suivant, nous prendrons comme point de départ la position actuelle.

Notons que cette résolution suppose une propagation simultanée, à la même vitesse, du front et de la fissure, puisque la condition de propagation de la fissure est utilisée dans la détermination de la position du front.

Allée de croissants

Dans le cas d'une allée oscillante nous utilisons le même schéma, mais nous étudions à chaque étape la condition de propagation, qui peut ici être mise en défaut. La valeur de \bar{D} , obtenue en faisant l'hypothèse de la propagation fixe en effet la valeur de $\Gamma(v) = e\bar{\Gamma}$, et peut être trop faible par rapport à la valeur minimale $\Gamma_0 = \Gamma(v = 0)$, déterminant alors l'arrêt de la propagation. Nous nous attendons ainsi à une propagation moins efficace au moment où la fissure commence à tourner autour d'un point d'arrêt.

Lorsque la fissure est arrêtée, nous observons expérimentalement le développement d'un nouveau front de délaminage, sur le bord avant de la fissure qui vient de se propager. Nous observons ensuite un re-démarrage de la fissure dans une direction différente, formant alors un point anguleux. Cette phase n'est pas décrite dans notre modèle.

Dans le modèle numérique, nous autorisons la propagation de la branche retour le long de la fissure, en reprenant les étapes précédentes. Au début, le front de délaminage se trouve pratiquement parallèle à la découpe ancienne, c'est donc une situation très mal décrite par notre modèle, qui est plus pertinente lorsque le front est quasi-perpendiculaire à la découpe). Nous savons de plus qu'en réalité cette phase de propagation est fortement influencée par la présence d'un front de décollement émanant de la découpe ancienne. Pour

toutes ces raisons, nous n'attendons pas mieux qu'une description qualitative du début de cette phase de retour par notre approche. La fissure retrouve cependant assez rapidement un mode de propagation à la distance W_1 de la découpe ancienne où notre modèle retrouve sa pertinence, et au total nous retrouvons la forme de l'allée oscillante de propagation.

Nous notons enfin que la forme du motif de propagation dépend de façon très sensible du paramètre Γ_0 qui fixe le point d'arrêt de la fissure. En effet, selon le choix de ce paramètre, on peut obtenir des oscillations à amplitude croissante ou décroissante. C'est pour un choix très particulier du paramètre que l'amplitude est constante. Dans les situations expérimentales, si nous observons quelquefois des motifs à amplitude variables, ils sont très souvent à amplitude constante. Ceci suggère que le mécanisme décrit par notre modèle simple est incomplet : le mécanisme qui fixe l'amplitude n'est pas très robuste (une seule valeur du paramètre Γ_0).

CHAPITRE

4

Dynamique : petits croissants,
cercles et étoiles



Motif de croissants dans un film de SOG à moitié décollé.

Dans le chapitre précédent, nous avons étudié sous quelles conditions les fissures interfaciales et les fissures dans le film coopèrent dans un nouveau mode de rupture. Nous avons vu qu'une taille correspondant au maximum d'énergie élastique relâchée est sélectionnée et permet de décrire les nouvelles limites de stabilité observées dans les films minces. Nos arguments sont particulièrement valables lorsque la fissure dans le film n'est pas possible sans le décollement. Cependant, nous remarquons que même lorsque la propagation de fissures isolées est possible, les motifs décrits précédemment peuvent se propager si l'énergie d'interface est faible (section 4.1). Nous présenterons quels motifs se propagent dans les expériences lorsque l'on augmente l'énergie résiduelle e disponible dans la couche et nous introduirons de nouveaux motifs de fissures observés sous ces conditions (cercles, étoiles et croissants de petites amplitudes). D'une façon générale, la sélection des motifs nécessite de mieux décrire les vitesses de propagation du front de délamination et de la fissure en fonction du chargement (section 4.2). Lorsque la propagation de fissure isolée et la collaboration fissure-délamination sont toutes deux énergétiquement possibles, nous chercherons à savoir quel mode de rupture est favorisé (section 4.3). Nous proposerons des pistes de compréhension de la sélection des rapports d'aspect dans les allées de croissants (section 4.4). Nous décrirons enfin les motifs de fissures obtenus à grand rapport G_c/Γ : la délamination gouverne alors la nucléation de nouvelles fissures isolées conduisant à la formation d'étoiles ou dicte le chemin de propagation de la fissure en forme de cercles (section 4.5).

4.1 Diagramme de configuration étendu

À la fin du chapitre précédent, nous avons vu que les allées de croissants de grand rapport d'aspect se propagent dans une bande définie par $\Gamma_1 > \Gamma_0 > \Gamma_2$. Des allées de croissants de plus faible rapport d'aspect se propagent cependant au-dessus de la condition d'arrêt des fissures autour d'un point singulier ($\Gamma_2 > \Gamma_0$). Ce mode de propagation est également observé au-dessus de l'épaisseur critique permettant de propager des fissures isolées (figure 4.1). Trois régions apparaissent dans le diagramme de configuration. Elles correspondent à trois rapports d'aspect AR différents que nous avons défini comme le rapport de l'amplitude sur la longueur d'onde des croissants (figure 3.10). Le rapport d'aspect des croissants diminue pour des valeurs croissantes de $\gamma e/G_c$ et e/Γ_0 . Pour $\gamma e/G_c > 0.5$, le mode de propagation par la collaboration fissure-délamination mise en évidence au chapitre précédent et la propagation de fissures isolées sont en compétition. Nous observons effectivement la propagation de croissants de faible rapport d'aspect, de duos de fissures et de fissures suiveuses. Dans le diagramme de configuration (figure 4.1), le coin supérieur gauche caractérisé par des grands rapports $\gamma\Gamma_0/G_c$ présente les motifs usuels de fragmentation interfaciale : le film faïence puis les fragments

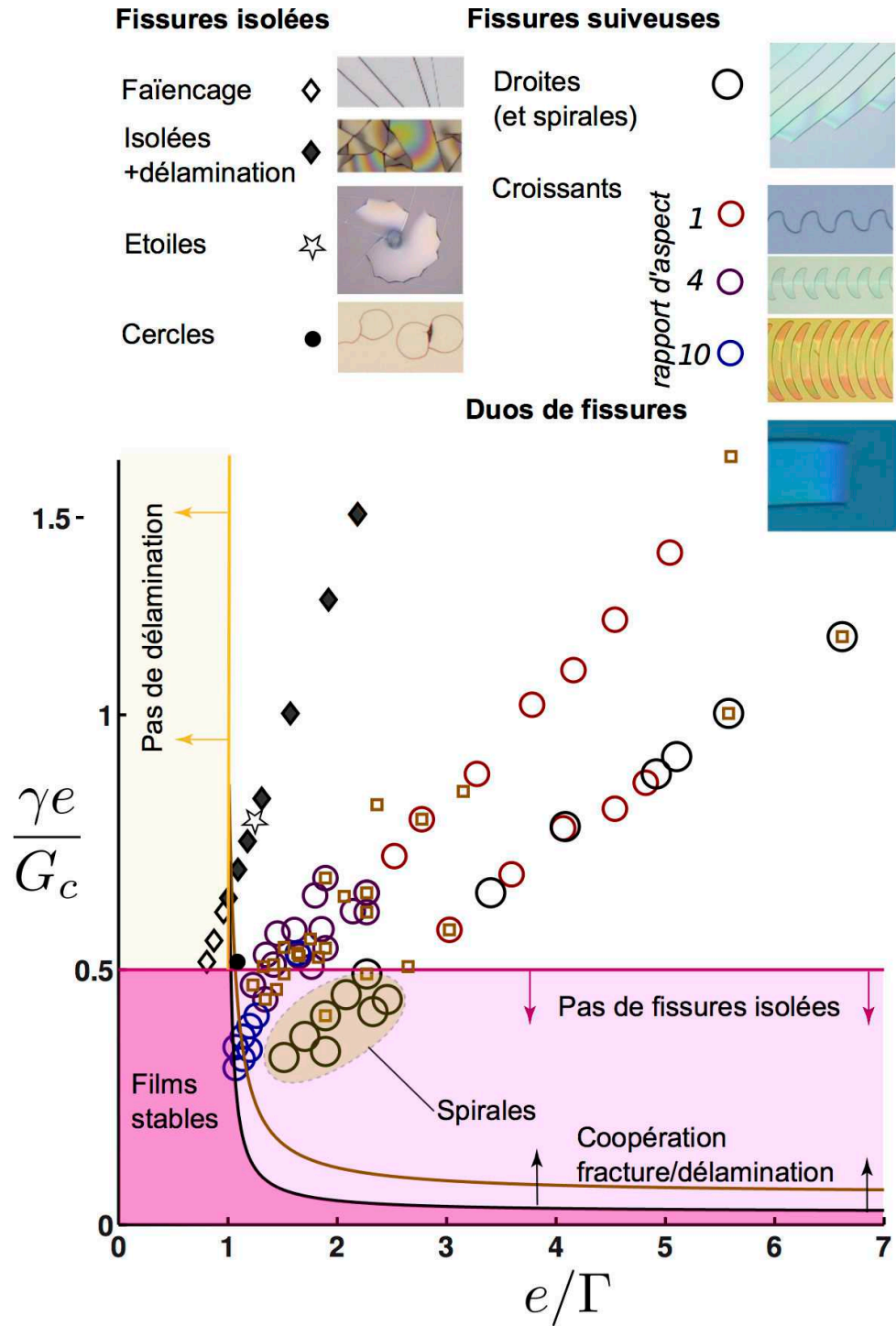


FIGURE 4.1: Diagramme de configuration. Le mode de rupture collaboratif (fissures suiveuses et duos de fissures) apparaît dans des situations où la propagation de fissures isolées est énergétiquement possible. Les rapports d'aspect des allées de croissants décroissent pour des grands chargements (à grand e). Notons également l'apparition de motifs en étoiles ou en cercles.

délaminent avec une vitesse de propagation faible par rapport à la vitesse des fissures isolées (comme décrit dans la section 2.4.2). Un motif intéressant en forme d'étoiles nous interpelle sur le rôle du front de délamination pour la nucléation de nouvelles fissures (section 4.5.1). Lorsque l'on décroît le rapport $\gamma\Gamma_0/G_c$, nous observons la propagation d'allées de croissants de faible amplitude et de fissures suiveuses. Dans des conditions très particulières (proche des limites $(e/\Gamma; \gamma e/G_c) = (1; 0.5)$) nous observons la propagation de cercles (section 4.5.2). Pour déterminer sous quelles conditions les différents motifs sont sélectionnés, nous avons besoin de comprendre la dynamique du processus de fragmentation : les modes sont en compétition et la propagation la plus rapide dans la configuration sera celle observée. Dans la section suivante, nous décrirons la dépendance de la vitesse des différents modes de propagation possibles au chargement e .

4.2 Un problème de vitesse.

Comment la vitesse de propagation des fissures est-elle fixée dans le système ? Nous avons vu que l'énergie d'adhésion $\Gamma(v_d)$ augmente avec la vitesse de propagation du front de délamination. La vitesse de délamination autour d'un défaut droit v_d est ainsi fixée par le rapport de l'énergie disponible e à l'énergie d'interface à vitesse nulle Γ_0 . Ce raisonnement est également valable pour la vitesse de propagation d'une fissure dans le film. Nous allons montrer comment nous pouvons décrire les vitesses de propagation des différents modes de rupture que nous observons en fonction de G_c/e et Γ/e : fissure isolée (v_i), délamination à trois bords libres (v_{BL3}) ou à deux bords libres (v_{BL2}), duos (v_2) et fissures suiveuses (v_1).

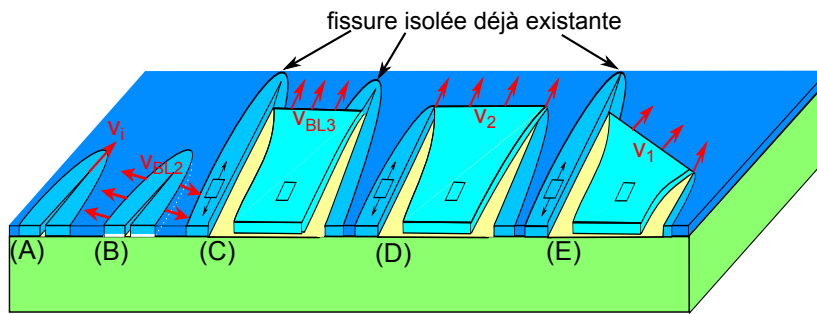


FIGURE 4.2: Vitesse de propagation des fissures isolées v_i (A), du front de délamination autour d'une fissure (présentant deux bords libres) v_{BL2} (B), ou dans une languette (présentant 3 bords libres) v_{BL3} (C), d'un duo de fissure v_2 (D) ou d'une fissure suiveuse v_1 (E).

4.2.1 Vitesse des différents modes observés

Nous rappelons les seuils de propagation des différents modes de propagation observés et définissons les vitesses de chacun de ces modes.

Vitesse de fissures isolées

D'une manière générale, l'énergie nécessaire pour propager la fissure $G_c(v)$ est une fonction de la vitesse de sollicitation (Bouchbinder *et al.* (2010)). La vitesse des fissures isolées v_i est fixée par :

$$\frac{G_c}{e} f\left(\frac{v_i}{v_i^*}\right) = \gamma \quad (4.1)$$

où f est une fonction de v_i^* , une vitesse caractéristique du système (par exemple due à la viscoélasticité du matériau ou à un phénomène de diffusion en tête de fissure).

Jusqu'ici nous avons considéré que cette vitesse v_i était nulle. Cette condition était justifiée par le fait que lorsque $\gamma e/G_c \leq 0.5$, les fissures isolées ne se propagent pas. Le front de délamination était donc infiniment plus rapide et sa vitesse fixée par la position de la fissure. Lorsque nous travaillons à $\gamma e/G_c > 0.5$, il faut comparer la vitesse d'avancée d'une fissure à celle des fronts de délamination autour d'une fissure pour décrire la propagation des motifs observés.

Vitesse de délamination autour d'une fissure

Nous avons déjà mesuré la vitesse d'un front de délamination se propageant autour d'une fissure droite de très grande longueur (que nous considérons comme infiniment longue). Nous rappelons la dépendance attendue de la vitesse avec l'énergie interfaciale à vitesse nulle Γ_0 et le chargement e :

$$\frac{\Gamma}{e} g\left(\frac{v_{BL2}}{v_d^*}\right) = \frac{1 + \nu_f}{2} \quad (4.2)$$

La dépendance de cette énergie avec le coefficient de Poisson vient du fait que l'énergie élastique est essentiellement relâchée dans la direction parallèle à la fissure. L'énergie contenue dans l'autre direction n'est disponible que dans le cas de la propagation d'un front entouré de trois bords libres (une languette).

Vitesse de délamination dans une languette

Dans le cas où la délamination se propage à partir de trois bords libres, l'énergie relâchée lors de la propagation est plus importante que l'énergie relâchée autour d'une fissure unique. La vitesse sélectionnée est alors en :

$$\frac{\Gamma}{e} g\left(\frac{v_{BL3}}{v_d^*}\right) = 1 \quad (4.3)$$

Jusqu'ici nous avons considéré que la vitesse de propagation d'un front de délamination v_{BL2} se décollant autour d'une fissure est très inférieure à la vitesse de propagation dans le cas de trois bords libres v_{BL3} (dans les bords d'un triangle ou dans une languette par exemple). C'est cette condition qui nous permet de justifier la grande dissymétrie observée dans la propagation des fronts de délamination. Par exemple, lors de la propagation de croissants de grande amplitude, le front de délamination autour d'une fissure à l'arrêt est de plusieurs ordres de grandeurs plus lent que la délamination observée lors de la propagation d'une nouvelle branche. Avec notre coefficient de Poisson expérimental, nous obtenons pourtant un rapport d'énergie élastique relâchée de $2/(1 + \nu_f) = 1.6$ entre la délamination dans une languette ou autour d'une fissure.

Vitesse d'un duo

Lors de la détermination du diagramme de configuration, nous avons déterminé la vitesse de propagation des duos de fissures :

$$\frac{\Gamma_2}{e} g\left(\frac{v_2}{v_d^*}\right) = 1 - 2 \left(\frac{G_c}{e} f\left(\frac{v_2}{v_i^*}\right) - \gamma \right) \frac{h_f}{W_2} \quad (4.4)$$

Vitesse d'une fissure suiveuse

Nous avons également déterminé la vitesse de propagation des fissures suiveuses :

$$\frac{\Gamma_1}{e} g\left(\frac{v_1}{v_d^*}\right) = 1 - \left(\frac{G_c}{e} f\left(\frac{v_2}{v_i^*}\right) - \gamma \right) \frac{h_f}{W_1} \quad (4.5)$$

4.2.2 Mesures de vitesses

Dépendance de la vitesse de fissures isolées avec le chargement.

Dans le cas où $v_i \gg v_{BL3}$, nous mesurons les vitesses de propagation de fissures isolées pour des épaisseurs de films croissantes (figure 4.3A). Nous observons que la vitesse augmente avec le chargement au-dessus du seuil de propagation $\gamma e/G_c = 1/2$. Elle sature à une vitesse de propagation maximale proche de $100 \mu\text{m/s}$ pour des chargements importants. La dépendance de la vitesse de propagation avec le chargement est donc très non-linéaire et balaye plusieurs ordres de grandeur pour de faibles variations de chargement.

Ces observations sont compatibles avec des mesures (Lin *et al.* (2007)) de la vitesse de délamination d'une interface hétérogène composée d'un film d'organo-silicate semblable au SOG déposé sur un film de carbonitride de silicium déposé entre deux wafers de silicium (figure 4.3B). L'échantillon est placé dans un dispositif de flexion 4 points pour contrôler le chargement de l'interface. Lin *et al.* (2007) mesurent la vitesse de délamination v_{BL3} en fonction du

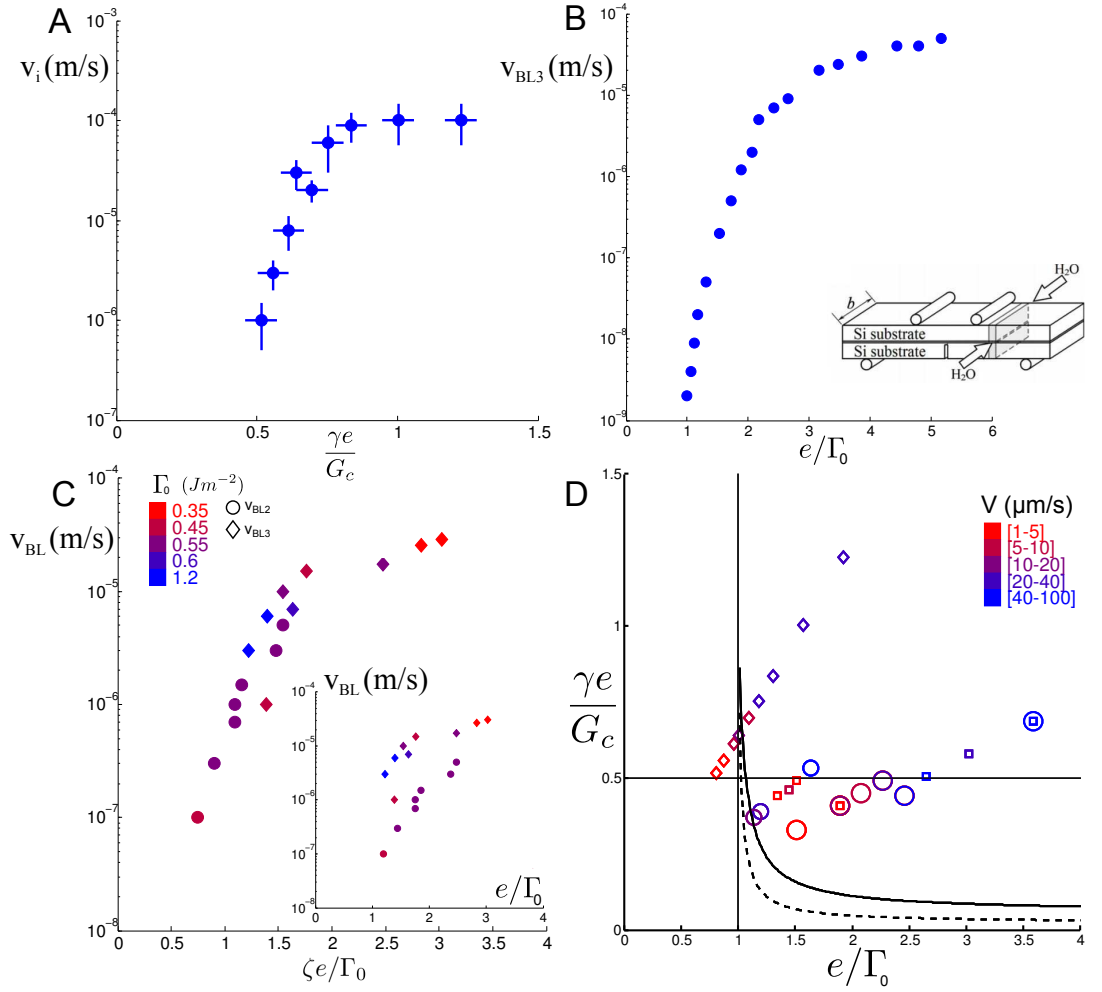


FIGURE 4.3: (A) Vitesse de propagation d'une fissure isolée v_i en fonction de $\gamma e/G_c$. La tendance de saturation de la vitesse est observée pour des charge-ments importants. (B) Vitesse d'avancée du front de délamination d'une inter-face SOG-carbonitrure de silicium v_{BL3} en fonction du rapport e/Γ_0 (adapté des données à 30% d'humidité de Lin *et al.* (2007)). Nous avons défini Γ_0 comme étant l'énergie d'adhésion correspondant à une vitesse de propagation de $2 \cdot 10^{-9}$ m/s. (C - Insert) Vitesse de propagation du front de délamination autour d'un défaut à deux bords libres (v_{BL2} cercle) ou à trois bords libres (v_{BL3} losange) en fonction de e/Γ_0 . L'énergie d'adhésion à vitesse nulle est indiquée par la couleur du symbole. (C) Si l'on tient compte de la différence d'énergie relâchée dans les deux situations via un facteur de proportionna-lité $\zeta = 1.6$, les vitesses se retrouvent sur une courbe maîtresse. Les vitesses semblent saturées à grand chargement. (D) Les vitesses des modes collabora-tifs et des fissures isolées sont codées en échelle de couleurs dans le diagramme de configuration.

taux de restitution d'énergie dans des environnements plus ou moins humides. La vitesse augmente de manière très non linéaire avec le taux de restitution d'énergie et est d'autant plus élevée que l'atmosphère est humide. Nous observons que les différentes courbes obtenues pour différents taux d'humidité se superposent lorsque nous renormalisons le taux de restitution d'énergie par le taux de restitution d'énergie à vitesse nulle. Nous représentons les données normalisées pour une humidité de 30%. Dans un premier régime, la vitesse dépend exponentiellement du taux de restitution d'énergie ce qui est compatible avec une description où la vitesse est fixée par la corrosion. La saturation observée pour de plus grands taux de restitution est interprétée comme une saturation de la vitesse de diffusion de l'eau en pointe de fissure (Lin *et al.* (2010)). Bien que l'interface étudiée par Lin *et al.* (2007) soit différente de celles de notre système expérimental, les vitesses de propagation en fonction du chargement observées dans nos expériences (figure 4.3A) présentent des similarités avec cette courbe maîtresse : dépendance exponentielle de la vitesse à faible rapport $\gamma e/G_c$ suivie d'une saturation à grand chargement.

Vitesse de fronts de délamination

Nous mesurons la vitesse de propagation du front de délamination autour d'une fissure v_{BL2} (pour une propagation autour de deux bords libres) ou pour une propagation à trois bords libres v_{BL3} (figure 4.3C). Nous mesurons les vitesses de propagation pour différentes valeurs d'énergie de délamination à vitesse nulle Γ_0 . Les vitesses mesurées se superposent lorsque l'on adimensionnalise le chargement de la couche e par Γ_0 . En insert, la vitesse de délamination autour d'une fissure v_{BL2} est significativement plus faible que celle d'un front pour lequel toute l'énergie est relâchée v_{BL3} . En effet, l'énergie élastique relâchée pour deux bords libres est 1.6 fois plus faible que l'énergie relâchée pour une propagation à trois bords libres. Le seuil de décollement est également obtenu pour une épaisseur plus élevée autour d'une seule fissure. Expérimentalement, nous observons préférentiellement la nucléation d'un front de délamination dans un coin plutôt qu'autour d'une fissure isolée. Nous remarquons qu'en raison de la très grande non-linéarité de la vitesse avec le chargement, v_{BL2} et v_{BL3} diffèrent de plusieurs ordres de grandeur lorsque le rapport e/Γ_0 est petit. Cependant si nous augmentons ce rapport, les deux vitesses sont du même ordre. Dans ces conditions, nous ne pouvons plus ignorer l'influence du front de délamination à deux bords libres lors de la propagation d'une fissure.

Si nous tenons compte de la différence d'énergie relâchée dans chacun des deux modes, les vitesses observées suivent une courbe maîtresse en fonction de $\zeta e/\Gamma_0$ (figure 4.3C) où $\zeta = 1$ pour la délamination à trois bords libres, $1/1.6$ pour la délamination à deux bords libres. La forme de la dépendance avec la vitesse ressemble à celle de la propagation d'une fissure dans le film. Cependant, nous pouvons difficilement mesurer la dynamique pour de grands rapports e/Γ car, pour des faibles adhésions, nous observons la propagation

du mode collaboratif.

Vitesse de propagation des modes collaboratifs

Dans ce dernier cas, la situation est plus complexe puisque la dynamique est fixée par la dépendance des deux énergies de fissures et d'adhésion et qu'elle dépend donc simultanément de e/Γ_0 et $\gamma e/G_c$. Nous reportons dans le diagramme de configuration les vitesses mesurées dans chacun des deux modes v_1 et v_2 et les vitesses isolées v_i (figure 4.3D). Nous notons que la vitesse augmente pour des e croissants. La propagation d'une fissure suiveuse est plus rapide que celle d'un duo pour un même couple $(\gamma e/G_c, e/\Gamma_0)$, l'aire balayée lors de la propagation d'une fissure suiveuse étant plus grande que l'aire d'un duo de fissures (car $W_1 > W_2$).

4.2.3 Conclusion

Les vitesses observées dépendent du rapport entre le chargement du film e et de l'énergie de fissure (resp. de délamination) à vitesse nulle G_c (resp. Γ_0). La dépendance est très non linéaire et les vitesses de propagation saturent pour des chargements importants. Ces caractéristiques sont compatibles avec un modèle de diffusion en tête de fissure. Les dépendances observées avec le chargement pour la vitesse de fissures du film ou à l'interface ont la même forme et nous considérerons qu'elles sont semblables (nous supposons que $f = g$).

4.3 Compétition entre fissures isolées et collaboration délamination-rupture

Les modes de fissures isolées ou collaboratives peuvent coexister dans la région $\gamma e/G_c > 0.5$ et $e/\Gamma_0 > 1$ du diagramme de configuration (figure 4.1). Prédire quel mode est sélectionné est *a priori* complexe, car il s'agit d'un problème de nucléation. Nous pouvons cependant comparer le taux de restitution d'énergie élastique de plusieurs configurations pour essayer de prédire quel mode est le plus avantageux énergétiquement. À partir des mesures de vitesse de fissure isolée et de délamination (figure 4.3 A et C), nous faisons l'approximation que l'évolution de la dissipation avec le chargement est semblable pour la fissure et la délamination. Nous considérerons ainsi que le mode qui présente le taux de restitution d'énergie le plus élevé se propagera le plus rapidement et sera donc sélectionné. Nous utiliserons d'abord un résultat classique de branchement à une interface pour déterminer si une fissure provenant de la surface du film est plus encline à traverser l'interface ou à se propager en se délaminant (section 4.3.1). Nous caractériserons ensuite un autre mode de nucléation à partir d'une délamination singulière (section 4.3.2).

4.3.1 Scénario 1 : branchement de fissures à une interface.

Considérons que la fissure nucléée à partir d'un défaut en surface. La fissure se propage dans l'épaisseur du film mince. Sous quelle condition branche-t-elle lorsque cette fissure rejoint l'interface faible (figure 4.4A) ?

Dans le cas où la fissure se propage dans un matériau ne présentant pas de discontinuité élastique, nous pouvons utiliser le développement d'Amestoy & Leblond (1992) qui calculent le taux de restitution d'énergie dans différentes directions de branchement de la fissure. La fissure est plus encline à brancher au niveau de l'interface faible si $\Gamma_0/G_c < 0.26$. He & Hutchinson (1989) retrouvent numériquement ce rapport dans le cas où il n'y a pas de contraste de module entre la couche et le substrat ($E_{sc} = E_f$). Si la fissure continue dans la couche inférieure, elle reste en mode I. Si elle bifurque à l'interface, elle passe en mixité modale avec un angle de mixité modale $\Psi \sim -40^\circ$ donné. Notons que dans le cas d'une propagation à une interface hétérogène, il faut considérer l'influence de D_1 sur le taux de restitution d'énergie. He & Hutchinson (1989) estiment le taux de restitution d'énergie d'un front de délamination et d'un front traversant une interface dans le cas où les modules élastiques diffèrent. Une difficulté supplémentaire vient alors de la singularité des contraintes en pointe de fissure qui n'est plus en \sqrt{r} . La singularité est plus forte (respectivement plus faible) que la racine si le module du film est supérieur (resp. inférieur) à celui du substrat. Pour une couche directement déposée sur le substrat ($E_s \gg E_f$), il suffit que $\Gamma_0/G_c < 0.5$ pour que la fissure bifurque à l'interface faible.

Faisons ici l'hypothèse (Scénario 1) que ce mode de nucléation, qui permet la nucléation du front de délamination à l'interface, pilote le passage de la propagation d'une fissure isolée au mode de propagation collaboratif. Nous pouvons tracer cette limite dans le diagramme de configuration (ligne en pointillés dans la figure 4.4C). Elle donne une indication raisonnable de la limite entre fissures isolées et coopération entre fissure et délamination. Cependant elle sous-estime la limite car plusieurs cas de coopération sont observées au dessus de cette ligne. Cette description néglige le fait que la délamination est facilitée lors d'un décollement dans un coin (qui relâche $2/(1 + \nu_f)$ fois plus d'énergie élastique). Nous allons donc proposer un second scénario où nous comparons le taux de restitution d'énergie relâchée dans un coin à la propagation de fissure isolée par un calcul numérique.

4.3.2 Scénario 2 : compétition entre délamination en coin et fissure isolée

Considérons la compétition entre la propagation d'une fissure isolée et celle d'un front de délamination se propageant en régime permanent à partir d'un coin. Calculons le taux de restitution d'énergie dans un coin (figure 4.4B) en régime permanent $G_{coin} = 0.306$ N/m. Il faut veiller à ce que cette évalua-

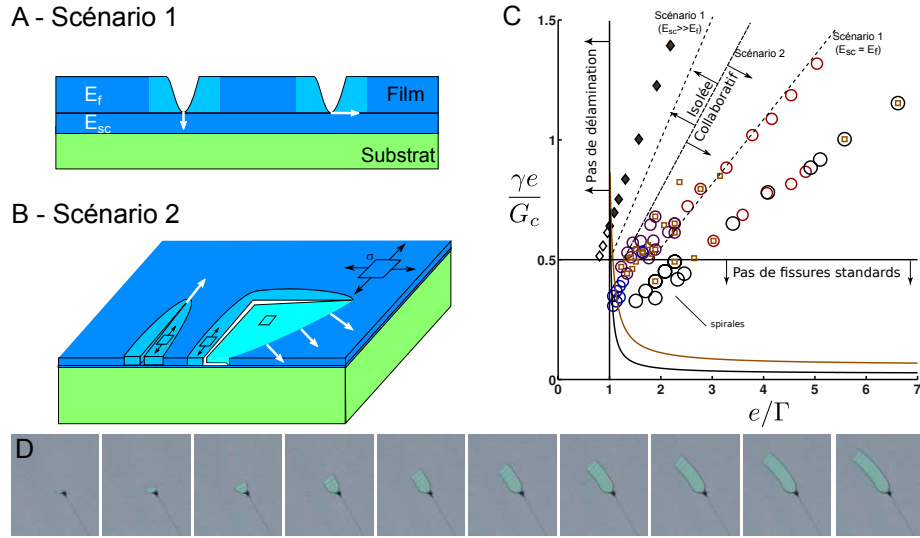


FIGURE 4.4: Critères de branchement et compétition entre les différents modes de propagation. (A) Scénario 1 : Bifurcation à une interface faible décrite analytiquement par Amestoy & Leblond (1992). (B) Scénario 2 : compétition entre délamination en coin et fissure isolée. (C) Diagramme de configuration avec les limites correspondantes séparant les modes collaboratifs du mode isolée. (D) Cas limite expérimental où la nucléation d'un duo de fissures apparaît à côté de la propagation d'une fissure isolée. Les vitesses de propagation des deux modes sont très semblables dans ce cas particulier.

tion ait lieu pour des fronts de délamination suffisamment étendus pour être en régime permanent. Nous effectuons donc le calcul pour des longueurs de front de délamination croissantes. Le régime permanent est obtenu rapidement pour des tailles inférieures à l'épaisseur de la couche. Nous pouvons la comparer au taux de restitution d'énergie d'une fissure isolée $G = 0.75 \text{ N/m}$. Les fissures collaboratives sont donc énergétiquement favorisées par rapport à la propagation de fissures isolées si $\Gamma_0/G_c < 0.4$. La propagation du front de délamination dans un triangle est alors plus rapide que la propagation d'une fissure isolée et nous nous attendons à voir la propagation du mode collaboratif. Cette limite est tracée dans le diagramme de configuration où elle délimite bien les deux modes de rupture (figure 4.4C). Un cas limite expérimental où les deux modes de propagation sont obtenus simultanément est représenté en figure 4.4D. Dans ce cas, la vitesse de propagation de la fissure isolée est légèrement supérieure à la celle du duo de fissures.

4.3.3 Conclusion

Lorsque les fissures isolées et le mode collaboratif sont énergétiquement possibles, nous pouvons prédire quel mode de propagation est le plus avanta-

geux en comparant numériquement l'énergie relâchée lors de la propagation d'une fissure isolée à celle d'un front de délamination dans un coin. Nous prédisons la limite entre les deux modes pour $G_c/\Gamma_0 = 0.4$ qui est bien vérifié expérimentalement. Ce calcul met en évidence la différence importante entre le relâchement à deux bords libres et celui à trois bords libres, ce dernier relâchant significativement plus d'énergie élastique. Nous allons maintenant examiner l'influence des vitesse de propagation d'un front de délamination et d'une fissure suiveuse sur la sélection du rapport d'aspect des allées de croissants.

4.4 Rapport d'aspect du croissant

4.4.1 Compétition entre fissures suiveuse et délamination

Expérimentalement nous observons que l'amplitude des allées de croissants est d'autant plus faible que le rapport e/Γ_0 est élevé (figure 4.5A). Dans le chapitre précédent (section 3.4.1), nous avons décrit la propagation de croissants de grandes amplitudes. Dans cette situation, la vitesse de propagation de la fissure suiveuse v_1 (lors de la propagation d'un nouveau bras de l'allée de croissants) est très grande devant la vitesse de propagation du front de délamination autour de la fissure v_{BL2} (figure 4.5D). La vitesse de propagation des fissures suiveuses v_1 est alors très significativement supérieure à celle de propagation d'un front à deux bords libres (ligne pointillée bleue de la figure 4.5B). Nous avons vu que le critère d'arrêt de la fissure (dans la bande $\Gamma_1 > \Gamma_0 > \Gamma_2$) est alors bien décrit par l'impossibilité énergétique pour la fissure qui se propage à tourner autour du point singulier situé à l'extrémité du segment précédent.

Augmentons e/Γ_0 : la vitesse de propagation à deux bords libres et d'une fissure suiveuse v_1 augmentent. Si la dépendance des vitesses avec le chargement était linéaire, nous ne verrions pas de dépendance de la sélection du motif avec le chargement. Cependant, la dépendance de la vitesse est très non linéaire avec le chargement : pour un chargement élevé, la vitesse v_1 commence à saturer. Plaçons nous à $e/\Gamma_0 \sim 3$ (ligne pointillée rouge de la figure 4.5B). La vitesse du front de délamination diffus autour du croissant (similaire à la vitesse de délamination à deux bord libre v_{BL2}) n'est plus négligeable devant v_1 : un front de délamination étendu grandit le long de la fissure qui se propage (figure 4.5E).

L'observation en temps réel de la propagation de fissures de petits rapports d'aspect n'est pas aisée : alors que la propagation des grands croissants présente des temps de pause long entre la propagation de chaque branche (v_{BL2} étant très inférieur à v_1) celle des petits croissants est rapide et continue. Si le front de délamination grandit trop vite, il change la direction de propagation de la fissure. Cette hypothèse de l'influence des fronts de délamination entourant la fissure sur la sélection du chemin est confirmée par des expériences

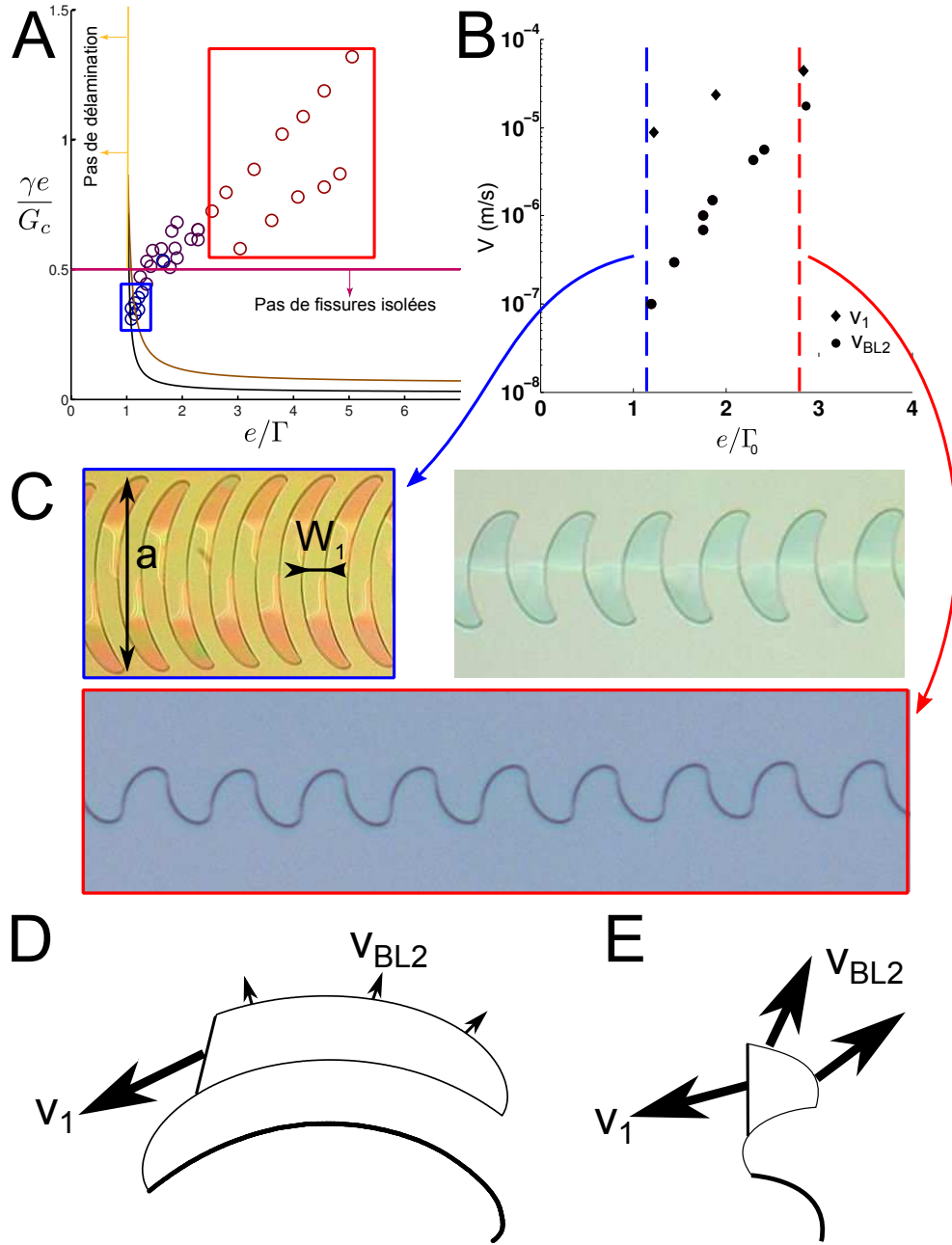


FIGURE 4.5: (A) Le rapport d'aspect des croissants décroît avec e/Γ_0 . (B) La différence de vitesse entre la délamination à deux (cercles) et trois (losanges) bords libres est beaucoup plus marquée pour des faibles e/Γ_0 (ligne pointillée bleue) que pour de grands e/Γ_0 (ligne pointillée rouge). (C) Les trois rapports d'aspect des croissants correspondant. (D) Pour les grands rapports d'aspect, la vitesse de propagation du front de délamination (v_{BL2}) est négligeable devant la vitesse de propagation de la fissure v_1 . (E) Ceci n'est plus vrai lorsque l'on augmente e/Γ_0 .

moins contrôlées conduites sur des films de vernis où nous voyons que la propagation des fissures est déterminée par la forme des front de délamination qui se développent rapidement autour de la fissure.

4.4.2 Direction de propagation de la fissure en fonction du front de délamination.

La description énergétique du changement de direction est complexe. Nous pouvons cependant revenir au calcul numérique en contraintes pour essayer de décrire qualitativement la sélection d'une nouvelle direction de propagation. Nous considérons une languette dans la géométrie d'un duo de fissures se propageant à la largeur optimale pour laquelle k_{II} s'annule (section 3.3.6). Nous ajoutons un front de délamination étendu le long des fissures (schéma de la figure 4.6A). Ce front change la direction optimale de propagation pour lequel k_{II} est nul après propagation. Nous calculons l'angle Θ que forme la direction optimale de propagation avec la propagation droite et le taux de restitution d'énergie $\max(G_N)$ dans cette nouvelle direction. Normalisons $\max(G_N)$ par le taux de restitution d'énergie G_D obtenue pour une propagation droite (figure 4.6). Numériquement, nous observons que la direction de propagation et le taux de restitution d'énergie dépendent peu des détails géométriques du front délaminé mais dépendent crucialement de l'angle de raccordement du front de délamination θ . Pour deux géométries différentes présentant des surfaces de front très différentes mais un même angle θ (représentées sur le schéma de la figure 4.6A), G_D et Θ sont ainsi très similaires.

Nous observons que pour des petits angles θ (entre 0 et 40°), $G_N(\Theta)$ est quasiment maximale pour $\Theta = 0$ et $G_N = G_D$. La fissure continue tout droit malgré le front de délamination. Le mode de propagation collaboratif à la distance optimale W_2 est donc assez stable par rapport à la propagation d'un front de délamination étendu le long de la nouvelle fissure. Cependant, lorsque l'angle θ que la zone délaminée forme avec la tête de la languette est plus élevé, le taux de restitution dans la nouvelle direction G_N devient significativement plus grand que dans la direction droite G_D : par exemple pour $\theta = 50^\circ$, $G_N/G_D = 1.5$. La fissure change alors de direction et la nouvelle direction de propagation (prédite pour obtenir $k_{II} = 0$ après branchement) est de $\Theta = 20^\circ$.

Lors de la propagation, l'interaction des deux fronts de délamination conduit donc à un raccourcissement de l'amplitude des allées de croissants. Plus l'énergie disponible est importante, plus les vitesses de propagation d'une fissure suiveuse et d'un front sont proches, plus l'amplitude des croissants décroît. Dans la limite des grands rapports e/Γ_0 , les deux vitesses saturent et nous observons la propagation de rapports d'aspect d'ordre unité. Ces arguments nous permettent également de comprendre les expériences de Wan *et al.* (2009) où des amplitudes très différentes sont observées dans le même échantillon (figure 3.2F). Les contraintes sont imposées localement en chauffant le matériau avec un flux d'air chaud. Des motifs caractéristiques de grand rapport de

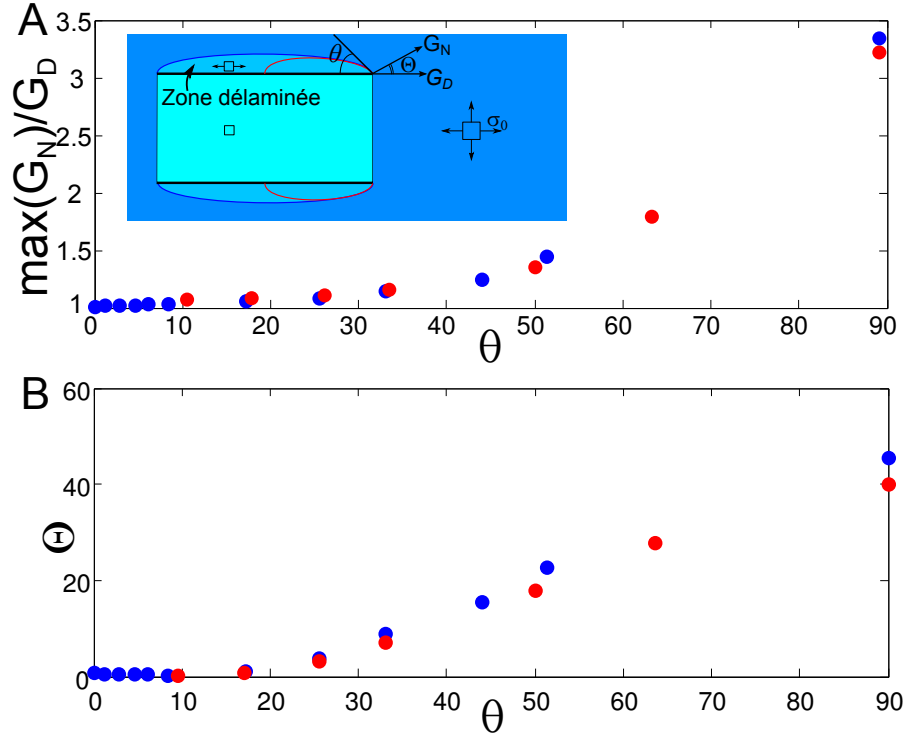


FIGURE 4.6: (A) Le maximum de taux de restitution d'énergie $\max(G_N)$ dans la direction telle que $k_{II} = 0$ normalisée par le taux de restitution d'énergie pour une propagation droite sans front de délamination G_D pour un duo de fissures en fonction de l'angle du front de délamination θ . Les deux couleurs des symboles correspondent aux deux géométries du front de délamination représentées sur le schéma (la surface de la zone délaminée est beaucoup plus importante dans la situation rouge que dans la situation bleue mais l'angle de raccordement θ au pied de la languette est le même). (B) Angle de propagation de la fissure dans la nouvelle direction (pour $k_{II} = 0$).

chargement sur énergie interfaciale cohabitent avec des motifs observés pour des rapports plus faibles. En plus des inhomogénéités spatiales de chargement engendrées par cette technique, l'humidité de l'environnement varie certainement, entraînant des variations non-contrôlées de vitesse de propagation donc de rapport d'aspect.

4.4.3 Autre critère d'arrêt géométrique

Alors que la languette est suffisamment levée pour passer au-dessus de la partie du film adhérent au substrat dans le cas des croissants de grand rapport d'aspect (voir par exemple l'effet tridimensionnel dans l'image FEG de la figure 4.7A ou les zones délaminées de la figure 4.5C), les languettes des croissants de faibles rapports d'aspect s'arrêtent lorsqu'elles touchent le film adhérent (voir par exemple la figure 4.7B ou l'image AFM (figure 3.35A)). Cette impossibilité géométrique est un autre candidat à la sélection du rapport d'aspect. L'élévation de la languette étant simplement fixée par le relâchement de l'énergie élastique au pied du front de délamination (effet de ligne de la figure 3.16), il n'y a pas de critère simple permettant de discriminer la possibilité de passer au dessus du film adhérent en fonction de l'épaisseur du film.

4.4.4 Forme des fronts de délamination après propagation

Nous observons qu'après propagation, la géométrie de la zone délaminée autour des allées est différente pour les croissants de grandes et faibles amplitudes. Par microscopie à contraste de phase, nous observons que le front de délamination des croissants est une ligne reliant les fissures dans la cas des motifs des grands amplitudes (ligne pointillée rouge de la figure 4.7D). En revanche il se décolle en amont du front de délamination dans une forme arrondie autour des petits croissants (ligne pointillée rouge de la figure 4.7C). En effet pour les grands croissants (faible e/Γ_0), l'énergie relâchée lors de la propagation d'un front à deux bords libres n'est pas suffisante pour payer l'énergie d'adhésion (pas de décollement diffus) alors qu'elle est possible pour les petits croissants (à grand e/Γ_0).

Pourquoi le décollement diffus est-il impossible au bord des grands croissants (ligne pointillée rouge de la figure 4.7D) alors qu'il est nécessaire à la propagation d'une nouvelle branche (ligne pointillée bleue)? Pour une énergie d'adhésion Γ_0 donnée, Jensen *et al.* (1990) nous permettent de prédire la forme du front : l'extension du front de délamination dépend linéairement de la taille du défaut. Dans le cas des grands croissants, l'amplitude de l'allée a est très grande devant sa longueur d'onde W . L'extension du front est donc grande autour du chemin de fissure (l'amplitude des croissants a ce qui permet la propagation du front bleu de la figure 4.7D), petite autour du front

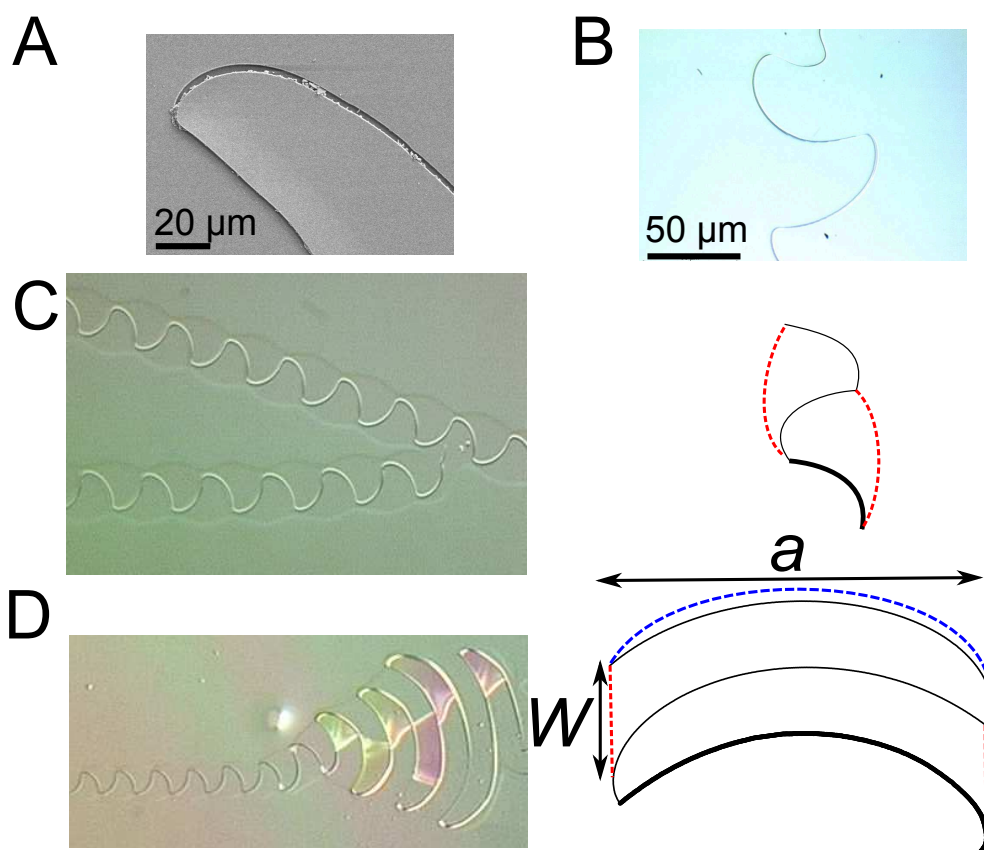


FIGURE 4.7: (A) Les languettes des croissants de grande amplitude passent au dessus du film encore adhérent au substrat. Après propagation, nous observons la position d'une telle languette au MEB. (B) L'arrêt des petits croissants se déroule lorsque la languette entre en contact avec le film encore adhérent. (C) Le front de délamination après propagation autour des petits croissants est étendu et arrondi pour les croissants de faible rapport d'aspect tandis qu'il reste droit (D) pour les croissants de grand rapport d'aspect.

(la longueur d'onde de l'allée W ce qui explique pourquoi le front rouge reste droit).

Une difficulté supplémentaire pour décrire la forme du front de délamination des croissants est l'influence de la courbure sur le front. Nous introduisons une piste de description d'un tel front dans le paragraphe suivant.

Remarque : délamination courbée

Quelle est l'influence de la courbure du chemin de fissure sur la propagation du front de délamination ? Dans notre chapitre introductif, nous avons considéré des fronts de délamination de courbure nulle (section 2.4.2). Cependant l'énergie relâchée autour d'une découpe circulaire est un peu différente de celle relâchée autour d'une fissure rectiligne. Nous considérons maintenant les points se trouvant loin des bords du croissant et nous assimilons le croissant à un cercle de rayon de courbure b égal au rayon de courbure caractéristique du croissant (figure 4.8). Cette approximation est raisonnable au milieu de l'arc de cercle formé par le croissant et très mauvaise près des bords où les conditions aux limites sont différentes. Nous pouvons alors déterminer le déplacement radial pour un point complètement relâché situé à une distance $a - b$ de la fissure en suivant le raisonnement de Lamé :

$$u_a = \frac{a^3 \sigma_{rr}|_{r=a}}{(a^2 - b^2)E_f} \left[(1 + \nu_f) \frac{b^2}{a^2} + (1 - \nu_f) \right] \quad (4.6)$$

Pour le rayon correspondant au front de délamination, la partie extérieure à $r = a$ n'est pas relâchée et la déformation sur la circonférence vaut alors :

$$\frac{u_a}{a} = \frac{(1 - \nu_f)\sigma}{E_f} \quad (4.7)$$

par continuité des déplacements en $r = a$. Nous pouvons en déduire la contrainte en a en fonction de la contrainte résiduelle σ du film :

$$\frac{\sigma_{rr}|_{r=a}}{\sigma} = \frac{a^2/b^2 - 1}{a^2/b^2 + (1 + \nu_f)/(1 - \nu_f)} \quad (4.8)$$

Le front va s'arrêter lorsque le rayon de courbure de la délamination atteint l'énergie d'interface Γ à vitesse nulle :

$$\frac{1 - \nu_f^2}{2E_f} [\sigma - \sigma_{rr}|_{r=a}]^2 h_f = \Gamma_0 \quad (4.9)$$

La géométrie courbe du front formé par les croissants influe donc sur la forme d'équilibre du front de délamination diffus se propageant à partir de la branche précédente. Une description plus poussée de la dynamique doit tenir compte de telles dépendances géométriques. Notons que la propagation de

croissants de faibles amplitudes est défavorisée par la plus grande courbure du chemin de fissure. La propagation d'un front de délamination est alors moins favorable énergétiquement, ce qui pénalise la propagation de petits croissants à faible e/Γ_0 . Ces difficultés ainsi que les dépendances très non-linéaires de la dynamique de la fissure et de la délamination avec le chargement rendent une description théorique complète de la sélection des motifs délicate. En conclusion de ce chapitre, nous présenterons des approches numériques et analytiques prometteuses (Baldelli *et al.* (2013)) pour prédire la propagation des fissures dans les films minces.

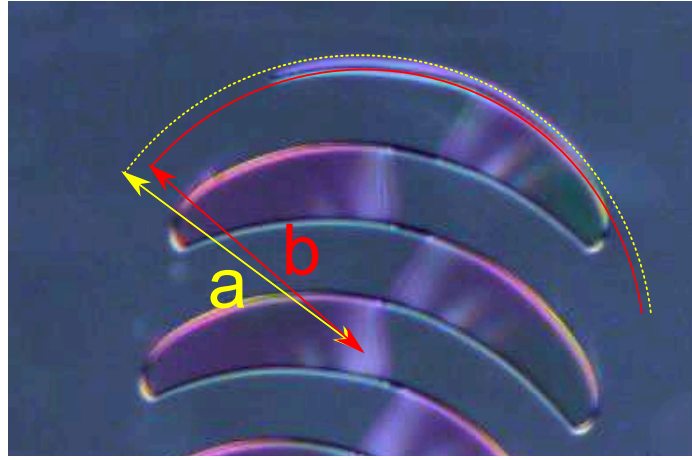


FIGURE 4.8: Lorsque le front de délamination est courbé, l'énergie relâchée lors de la propagation est inférieure à l'énergie relâchée autour d'un défaut droit. La répartition des contraintes dépend alors du rayon de courbure du défaut (de rayon b). Une approximation grossière consiste à assimiler le chemin du croissant à un défaut circulaire et à résoudre la distribution des contraintes sur le front situé à $a - b$ du croissant à partir du calcul de Lamé.

4.4.5 Conclusion

Le rapport d'aspect des allées de croissants décroît avec l'adhésion. En effet, la vitesse du front de délamination autour d'une fissure devient comparable à la vitesse de propagation d'une fissure suiveuse et l'interaction des deux fronts de délamination conduit à un raccourcissement de l'amplitude des allées. La propagation droite est pourtant assez stable même lorsqu'un front diffus se développe à partir du bord libre. Nous allons continuer à explorer l'interaction entre fissures et front de délamination dans le cas où les fissures isolées se propagent plus rapidement que le front de délamination dans la section suivante.

4.5 Motifs à “grand” Γ/G_c : étoiles, cercles, spirales de dessiccation

Lorsque la vitesse de propagation des fissures isolées v_i est plus grande que la vitesse de délamination, nous observons des motifs en forme d'étoiles très régulières (section 4.5.1). Bien que, dans notre système expérimental, ces motifs soient obtenus pour des relativement grands $\gamma\Gamma/G_c$ (dans le coin supérieur droit du diagramme de configuration), les énergies d'adhésion restent faibles au regard de systèmes plus standards. Lorsque l'on se rapproche de la limite de propagation des fissures et de la délamination ($\gamma e/G_c, e/\Gamma = (1/2, 1)$), nous observons la propagation de cercles (section 4.5.2). Nous décrirons également des motifs déjà observés dans des expériences de séchage de spirales de dessiccation (section 4.5.3) et le rebonds de fissures isolées sur une fissure précédente (section 4.5.4).

4.5.1 Nucléation assistée par la délamination : étoiles

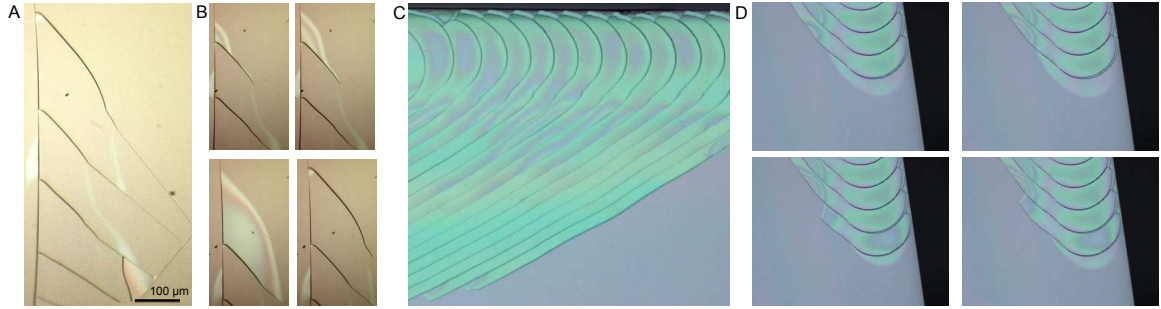


FIGURE 4.9: Nucléation assistée par la délamination. (A) Nous notons l'existence d'une taille légèrement supérieure à W_1 séparant plusieurs fissures. (B) Pour $e/\Gamma_0 < \gamma e/G_c$, la zone de délaminage grandit dans un coin puis nous observons la propagation d'une fissure isolée. (C) Lorsque l'on augmente e/Γ_0 , la propagation d'une fissure suivieuse est plus rapide que la propagation de fissure isolée. Nous observons alors deux tailles. (D) Notons que la délamination n'a alors pas lieu dans un coin mais le long d'une fissure courbée.

Lorsque la vitesse de propagation d'une fissure isolée v_i est plus grande que la vitesse de délamination dans un coin v_{BL3} , nous observons un régime où la nucléation de nouvelles fissures près d'un bord libre préexistant (fissure ancienne) est pilotée par le front de délamination. Nous observons l'apparition de fissures espacées assez régulièrement. L'espacement est un peu plus grand que la taille optimale entre fissures suivieuses W_1 (figure 4.9A). Ceci est dû au processus suivant : le front de délamination grandit autour du coin formé par le bord libre et la fissure précédente (figure 4.9B). La taille du front de délamination nécessaire pour nucléer une nouvelle fissure est supérieure à la taille

prédite pour la propagation d'une fissure isolée W_1 . Dès que la fissure nucléée, sa propagation le long du front de délamination est très rapide, puis la fissure maintenant isolée continue sa propagation au-delà du front de délamination. En effet comme $\Gamma_0/G_c > 0.4$, la vitesse de propagation d'une fissure suiveuse v_1 est inférieure à celle d'une fissure isolée v_i . La transition entre fissures coopératives et fissures isolées est très visible car l'ouverture de la fissure est beaucoup plus petite dans le dernier cas.

Dans une nouvelle expérience, augmentons e/Γ_0 en diminuant l'énergie d'adhésion de telle sorte que $\Gamma_0/G_c < 0.4$. Nous observons un phénomène de nucléation similaire, mais ensuite la fissure retourne vers sa taille optimale de fissure suiveuse W_1 (figure 4.9C). La vitesse de propagation du mode collaboratif v_1 est en effet supérieure à la vitesse de propagation d'une fissure isolée v_i . Dans ce cas, le front de délamination ne se propage pas à partir d'un coin mais à partir d'une fissure préexistante courbée (figure 4.9C) comme dans le cas des grands croissants. Nous avons donc une propagation du front de délamination à la vitesse v_{BL2} et non v_{BL3} . Nous remarquons une nouvelle fois l'existence d'une taille caractéristique de nucléation d'une nouvelle fissure, supérieure à la taille optimale de propagation de la fissure suiveuse W_1 .

Etoiles

Un motif courant obtenu grâce à la nucléation assistée par la délamination est la formation de structures régulières en forme d'étoiles (figure 4.10). La nucléation de chaque nouvelle branche est gouvernée par la propagation du front de délamination qui grandit entre deux bords libres. Nous observons des structures très régulières dans une limite où $v_i > v_{BL3}$. Notons la structure étonnante de l'amorce de la fissure qui se propage en collaboration avec le front de délamination. La fissure est alors très épaisse et un changement du plan focal dans l'observation au microscope nous indique que la fissure présente une structure tridimensionnelle complexe et forme un angle important avec le substrat. Une fois que la fissure est amorcée, une fissure isolée se propage indépendamment en reprenant un angle orthogonal au substrat.

Nous observons une nouvelle fois la sélection d'une taille du front de délamination nécessaire pour déclencher une nouvelle fissure. La compréhension de la sélection de cette taille demeure pour l'instant une question ouverte.

4.5.2 Cercles

Lorsque l'on s'approche du point satisfaisant les deux critères de propagation simultané $(e/\Gamma_0, \gamma e/G_c) = (1, 1/2)$, nous observons la propagation de cercles (figure 4.11A) qui ne présentent pas de front de délamination étendu lors de la propagation. Ces motifs se propagent à très faible vitesse (typiquement $0.1 \mu\text{m/s}$). La vitesse de la fissure isolée v_i est alors plus grande que la vitesse du front de délamination mais du même ordre de grandeur. Nous

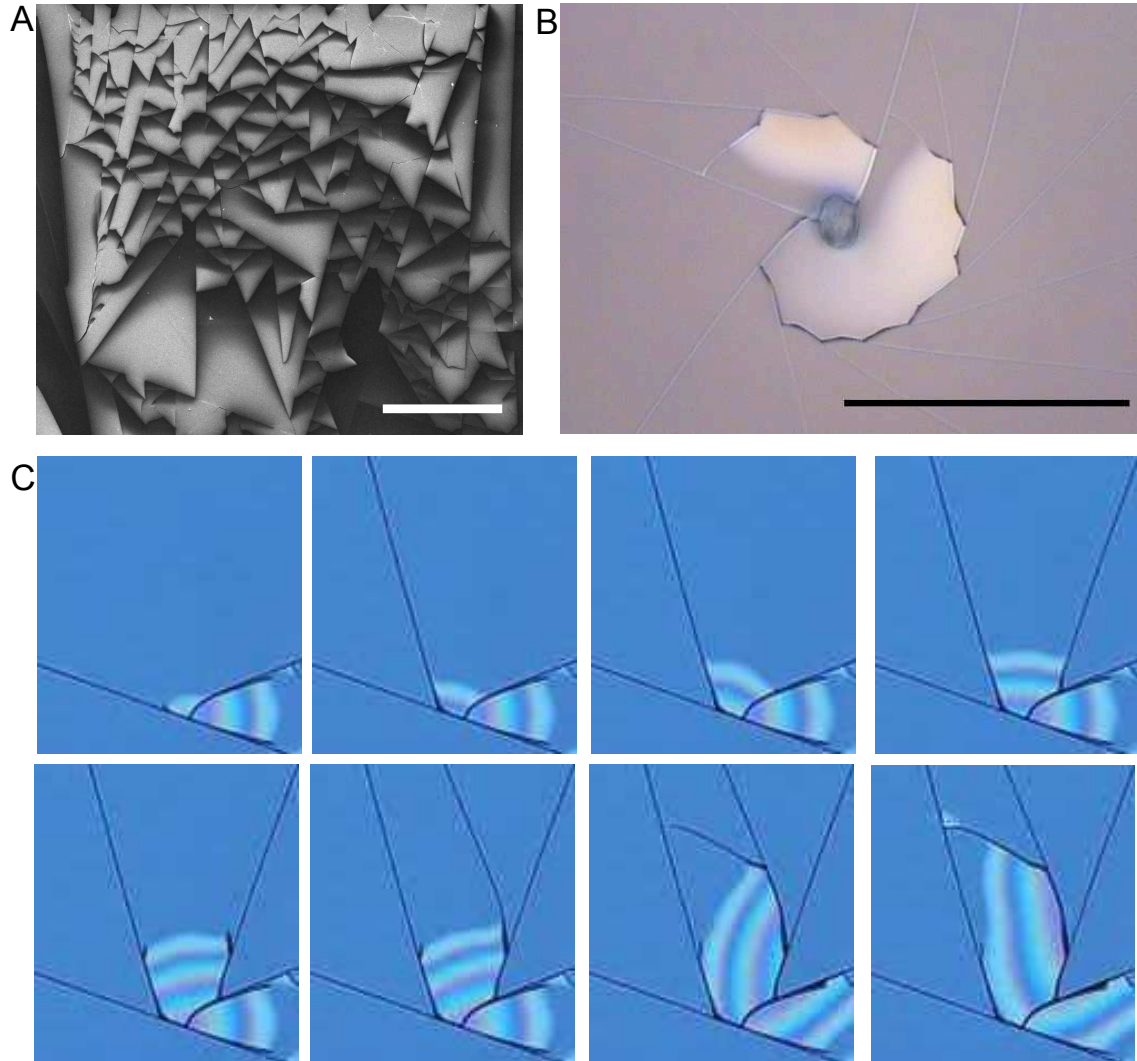


FIGURE 4.10: La délamination permet la nucléation de nouvelles fissures isolées entraînant la formation de motifs “cubistes” (A, images FEG, échelle $300\ \mu\text{m}$) ou organisés en étoile régulière (échelle $300\ \mu\text{m}$) (B). (C) La propagation en étoile est induite par la nucléation successive de fissures isolées pilotée par le front de délamination.

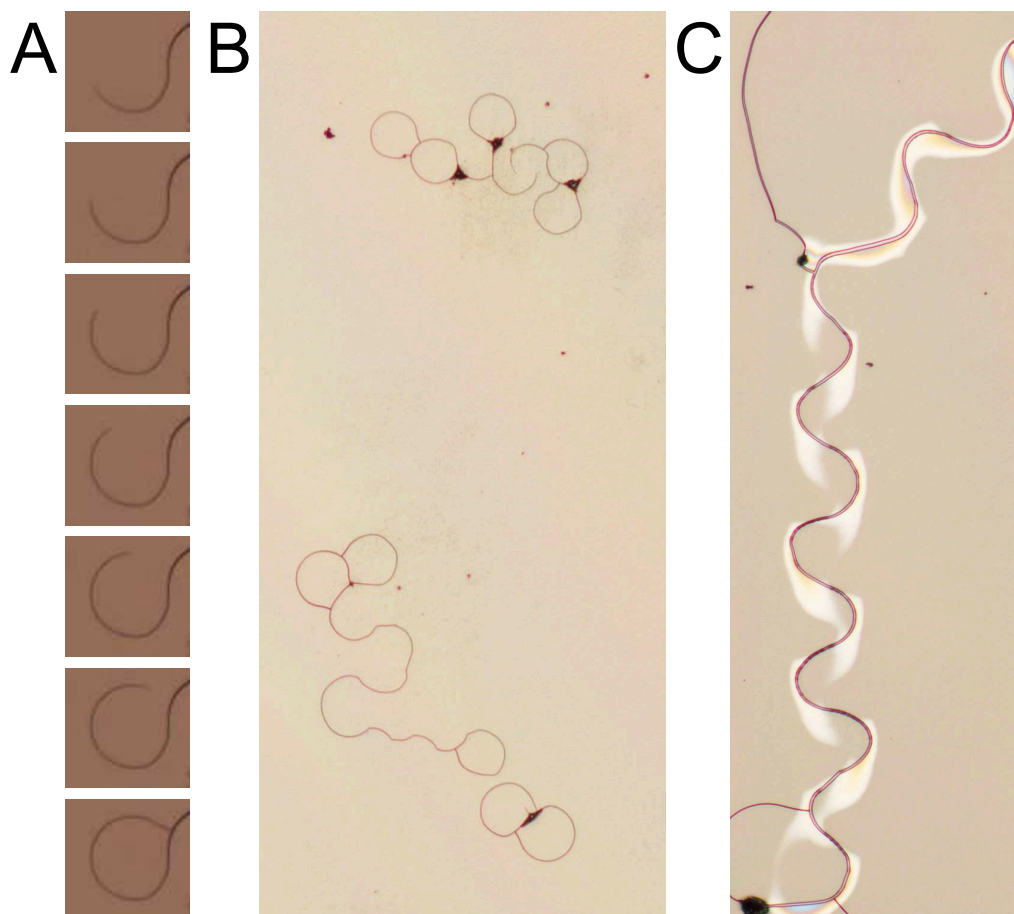


FIGURE 4.11: (A) Formation de cercles lorsque le front de délamination est confiné autour d'une fissure isolée. (B) La sélection de la courbure est très robuste pour une épaisseur donnée. (C) En augmentant légèrement l'épaisseur de la couche, nous observons la propagation de petits croissants dans le mode de propagation où la fissure coopère avec la délamination.

observons l'apparition d'une courbure bien déterminée. La situation est assez différente de celle observée habituellement dans les fissures collaboratives : la sélection est ici un rayon de courbure et non une taille. La taille du front de délamination autour de la fissures est difficile à mesurer car il est très petit (figure 4.11B). Augmentons légèrement l'épaisseur de la couche : nous observons la propagation d'allées de croissants de faible amplitude (figure 4.11C). Comment pouvons-nous décrire la propagation des cercles ?

Jensen *et al.* (1990) avaient postulé l'existence d'un régime de délaminage diffus (section 2.4.2) où le front de délamination est confiné sur une taille de quelques épaisseurs autour du défaut lorsque e/Γ_0 est très proche du seuil. Ce régime existe si le taux de restitution d'énergie est plus important pour des petites largeurs de front de délamination qu'en régime permanent (ce qui est vrai pour des films plus rigides que le substrat d'après Mei *et al.* (2007)). Si l'énergie d'interface à vitesse nulle est comprise entre ces deux valeurs, nous prédisons un délaminage diffus autour de la fissure, confiné à quelques épaisseurs. La longueur de délamination autour du défaut est alors fixée par l'épaisseur du film et ne dépend plus de la longueur du défaut. Ce front est difficile à observer expérimentalement car les largeurs de front prédites sont très petites. Supposons que ce front se propage d'un seul côté de la fissure. Dans cette situation, la propagation d'une fissure entourée d'un front de délamination confiné est instable : dès que la fissure change de direction, l'énergie relâchée du côté délaminé augmente et la déviation du chemin de fissures se poursuit. Le front de délamination engendre une dissymétrie des contraintes en tête de fissure et change la direction annulant k_{II} . Calculons le taux de restitution d'énergie élastique pour une fissure entourée d'un front de délamination (figure 4.12), le taux de restitution dans la nouvelle direction G_N excède la propagation isolée droite G_D lorsque la fissure est entourée d'un front de délamination. La direction de propagation est fixée par l'angle annulant k_{II} . Cette propagation définit donc un angle de propagation. Le lien avec la sélection d'un rayon de courbure n'est pas évident.

Pour des épaisseurs un peu plus importantes, le taux de restitution d'énergie en régime permanent excède l'énergie d'adhésion à vitesse nulle et nous observons une délamination extensive avec un mode de propagation en croissant de faibles amplitudes (figure 4.11C). Le mode de propagation en cercle est très peu fréquent car il n'apparaît que dans un espace très confiné du diagramme de configuration.

4.5.3 Spirale de dessiccation

Une propriété frappante du régime de faïencage suivi de la délamination (obtenu pour le coin supérieur gauche du diagramme de configuration) est la forme caractéristique circulaire prise par le front de décollement. Nous observons ce motif de façon robuste dans des films de vernis (figure 4.13A). Cette propriété géométrique du front de décollement est retrouvée par d'Andrès

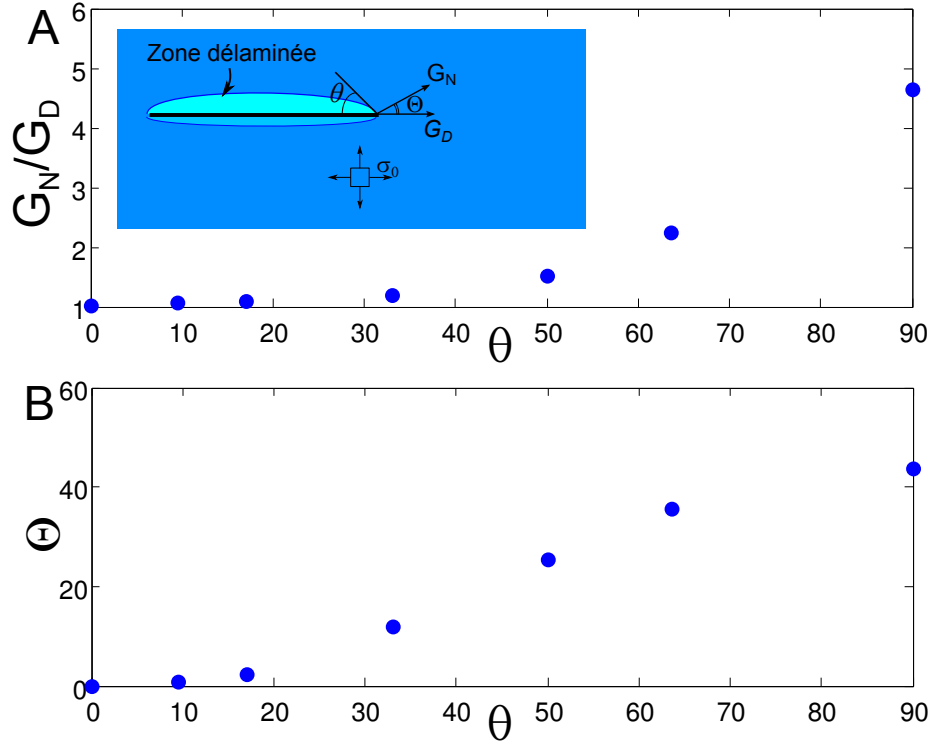


FIGURE 4.12: (A) Taux de restitution d'énergie G_N dans la nouvelle direction $k_{II} = 0$ normalisée par le taux de restitution d'énergie G_D pour une propagation droite sans front de délamination d'une fissure isolée en fonction de l'angle du front de délamination θ . (B) Angle de propagation de la fissure à dans la nouvelle direction correspondant à $k_{II} = 0$.

Baldelli *et al.* (2013) dans des simulations numériques (figure 4.13B).

Lorsque le front est stabilisé, un motif de fissures secondaires étonnantes en spirale de dessiccation se propageant vers l'intérieur a été observé dans des films colloïdaux (Leung *et al.* (2001); Lazarus & Pauchard (2011)). Il s'agit alors de spirales coniques où les fissures présentent un angle important par rapport au substrat. Comme dans le cas de la propagation des amorces d'étoiles, cette caractéristique apparaît clairement par microscopie optique en changeant le plan focal. Nous retrouvons la propagation de tels motifs qui suivent le front de décollement dans les films de SOG à grand rapport $G_c/\gamma\Gamma$ (figure 4.13C).

4.5.4 Rebonds de fissures isolées

Lorsque l'adhésion entre la couche et le substrat est importante, les fissures isolées se propagent et interagissent sur des distances typiques d'une épaisseur de couche. Dans la section 2.4.1, nous avons remarqué qu'une fis-

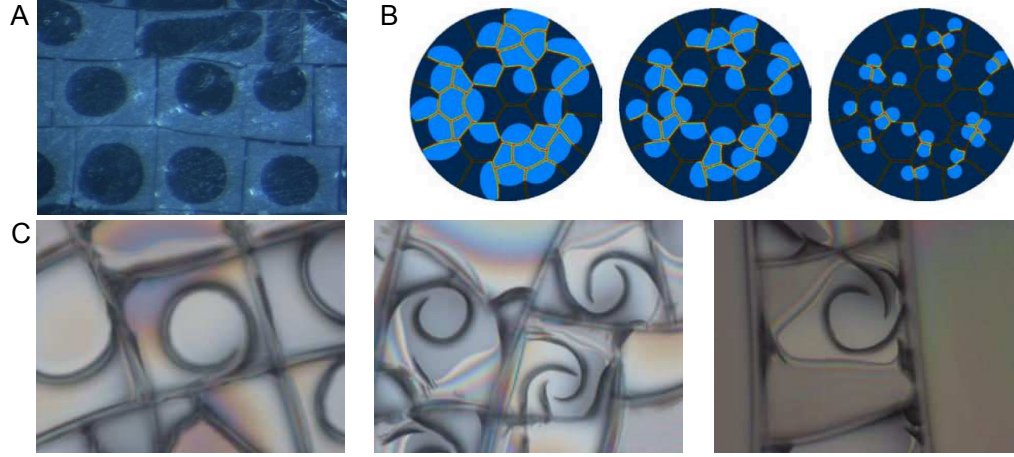


FIGURE 4.13: (A) Délamination après faïencage d'un film mince de vernis ($h_f = 90 \mu\text{m}$) : les fronts de délamination prennent une forme circulaire avec un rayon robuste. (B) Cette caractéristique est observée numériquement par Andrès Baldelli *et al.* (2013) dans des simulations numériques. La taille de la zone collée diminue avec le temps. (C) Cette caractéristique conduit à l'apparition de fissures en spirale de dessiccation dans nos films de SOG pour de grands rapports $G_c/\gamma\Gamma$.

sure A arrivant à proximité d'une fissure ancienne B interagit avec celle-ci en se branchant perpendiculairement car l'énergie élastique dans la direction parallèle à la fissure B est déjà relâchée. En fait, nous observons que pour des fissures arrivant avec un faible angle d'incident, la fissure A 'rebondit' parfois sur la fissure B antérieure (figure 4.14). La fissure A est réfléchiée avec un angle un peu supérieur à l'angle d'incidence.

Examinons cette réflexion en cours de propagation (figure 4.14A). La vitesse de propagation de la fissure A diminue drastiquement lorsqu'elle arrive à quelques épaisseurs de la fissure B, puis la fissure est déviée dans sa nouvelle direction et se propage à nouveau à sa vitesse initiale.

Xia & Hutchinson (2000) ont montré qu'un arrêt de la fissure était possible à proximité d'une fissure pré-existante mais la réflexion d'une fissure n'est pas décrite théoriquement à notre connaissance.

4.6 Conclusions et prolongements

Importance de la vitesse dans la sélection des motifs

Nous avons caractérisé la dépendance de la vitesse avec le rapport entre le chargement et l'énergie de fracture à vitesse nulle pour les différents modes de propagation observés dans la couche. Cette dépendance est cruciale pour

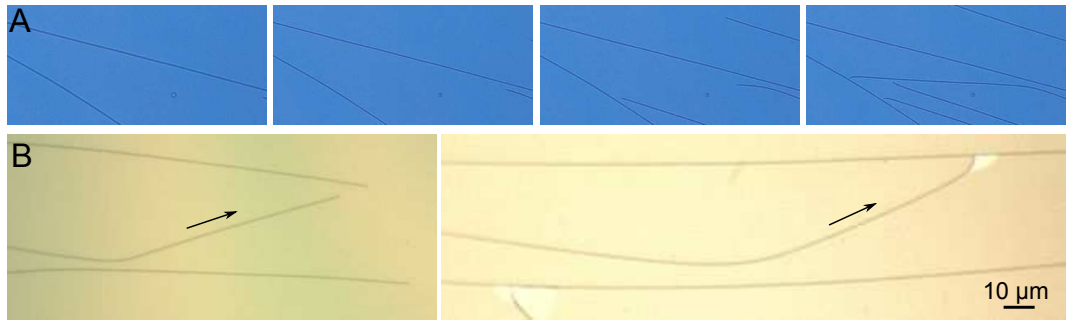


FIGURE 4.14: Lorsqu'une fissure isolée arrive à proximité d'une fissure pré-existante, elle se branche en général perpendiculairement à cette dernière. A, Pourtant, nous observons parfois une réflexion de la fissure incidente qui ralentit au voisinage de l'ancienne fissure puis repart avec un angle de réflexion proche à l'angle incident. B, Exemple de fissure rebondissant sur une fissure pré-existante.

la sélection du motif de fracture. Nous avons proposé des outils pour déterminer quel mode est favorable dans le cas où mode coopératif et fissures isolées peuvent se propager, pour prédire le rapport d'aspect des allées de croisants ou pour décrire la propagation des cercles et des étoiles. Nous proposons quelques idées expérimentales et théoriques qui prolongeraient naturellement cette étude.

Prolongements expérimentaux

Contrôle de la nucléation

Nous avons vu qu'un paramètre important de la sélection des motifs est la nucléation de la fissure. Dans notre système expérimental, la nucléation des fissures reste très empirique. Deux techniques prometteuses pourraient nous permettre de mieux maîtriser la forme des défauts initiaux :

- en rayant la surface du film avec une pointe AFM (technique que nous avons commencé à expérimenter avec Francisco Melo à Santiago)
- en structurant le substrat par gravure ou la première couche de sol-gel par embossage

Fissures d'écorces d'arbres

Des motifs étonnants sont observés dans des écorces d'arbres communs tels que le marronnier rouge (figure 4.15). Alors que nous nous attendons à observer des contraintes de tension principalement uniaxiale en raison de la croissance radiale du tronc, cette espèce présente des motifs sans direction transversale marquée. De plus, les échelles caractéristiques d'interaction entre fissures sont étonnement grandes comparées à l'épaisseur du film. Enfin, l'adhésion de l'écorce avec l'arbre est faible et les motifs présentent de larges

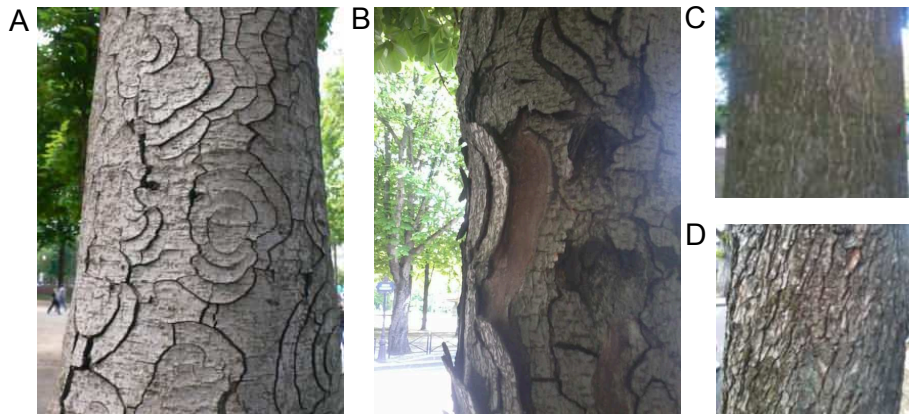


FIGURE 4.15: (A) Motifs en bandes concentriques dans des écorces d'arbres d'essences courantes (ici un marronnier rouge du parc de Sceaux). (B) Ces écorces présentent une faible adhésion avec le tronc. Les motifs de fractures des écorces du même arbre plus jeune (C) ou plus vieux (D) sont différents suggérant une influence de l'épaisseur de l'écorce.

parties délaminées. L'écorce présente ainsi des transitions de motifs entre les différents ages de l'arbre (alors que l'épaisseur de l'écorce augmente). Toutes ces observations nous poussent à rapprocher les motifs observés à notre mode de propagation de couplage entre fissure et délaminage. Cependant l'écorce ne se délamine pas entièrement. Même si les vitesses de telles fissures rendent l'observation de la propagation difficiles, nous pouvons espérer caractériser les contraintes, l'énergie de rupture et l'énergie d'adhésion des écorces.

Prolongements théoriques

Approche variationnelle de minimisation d'énergie élastique

Andrès L. Baldelli a étudié théoriquement et numériquement les couplages entre fissure et délamination dans les films minces par une approche variationnelle de minimisation d'énergie élastique. Il propose un modèle réduit basé sur une idée proposée par Xia & Hutchinson (2000). Nous présenterons succinctement cette idée dans le chapitre 5. Le modèle est rigoureusement dérivé par des développements asymptotiques et il est implémenté numériquement dans un modèle régularisé, non-local à gradient (modèle de dommage). Il permet de simuler la propagation d'une fissure d'interface couplée à la propagation de la fissure dans le film mince.

Lorsqu'il est près de seuil de propagation, Andrès observe la nucléation simultanée de fissures à branchement à 120° au-dessus de la contrainte critique de propagation dans un film soumis à un chargement croissant (figure 4.16A). Ces motifs rappellent les fissures des films de maïzena présentées dans la figure 2.6a. Pour des chargements plus importants, les contraintes résiduelles

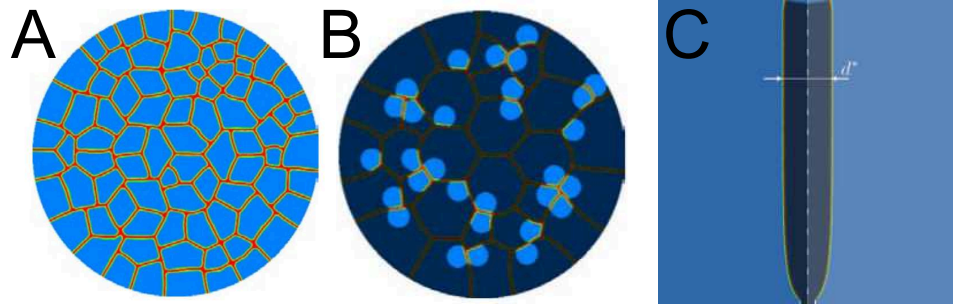


FIGURE 4.16: (A) Andr s L. Baldelli simule la propagation de fissures dans des films minces soumis   un chargement croissant. Il observe des motifs nucl ant   120° puis des fissures se branchant   120° . (B) Lorsque le chargement exc de l' nergie d'adh sion, les fragments se d collent et les parties adh rantes prennent des formes circulaires. (C) Lorsqu'il diminue la t nacit  de la couche avec le substrat, il observe la propagation de duos de fissures, qui convergent vers une taille d'interaction stable d^* .

exc dent la t nacit  interfaciale et il observe le d collement des fragments (figure 4.16B). Lorsqu'il diminue l' nergie d'adh sion avec le substrat, il observe la propagation de fissures coop ratives en forme de duos (figure 4.16C) pour lequel une taille d'interaction stable est s lectionn e.

Les ingr dients d crivant le mode de propagation par collaboration semblent donc r unis dans ce mod le num rique. L'identification des param tres du mod le pour parvenir   une description quantitative et l'impl mentation num rique d'un probl me de diffusion permettant de mod liser la variation de l' nergie de fracture avec la vitesse de sollicitation reste deux obstacles pour comparer ce mod le   nos exp riences.

Ouverture   des exp riences proches

Sensibilit    la courbure.

L'artiste belge Anne Ausloos travaille   partir de boue s diment e. Un bilame compos  d'une couche d'argile rouge d pos e sur une couche de terre sableuse grise s che et se d colle du substrat dans un mode de rupture rappelant le mode collaboratif que nous avons mis en  vidence (figure 4.17).

Quelle est l'effet de la courbure dans la s lection de la largeur optimale? Nous pouvons examiner cette question num riquement en calculant les facteurs d'intensit  des contraintes pour une couche pr sentant une courbure naturelle. Cette question se retrouve dans la plupart des ph nom nes de s chage o  un gradient de s chage dans l' paisseur de la couche entra ne une courbure naturelle. En diminuant la rigidit  du substrat, ce calcul pourrait s'ouvrir au probl me de la propagation d'une fissure dans une couche libre (pas d'adh sion avec le substrat) pr sentant une courbure naturelle.



FIGURE 4.17: Oeuvre d'Anne Ausloos du projet Desert passage.

Peigne de peinture

Déchirons une feuille de plastique recouvert d'un film de peinture par la méthode du pantalon (*trousers test*). La propagation de la fissure dans le film est droite mais celle du film de peinture forme une instabilité en peigne très semblable aux allées de croissants. La fissure et la délamination sont en compétition lors de la propagation et les outils que nous avons développés pourraient s'appliquer à cette propagation. Ce problème est beaucoup plus général et se rencontre lors de la déchirure de la plupart des matériaux stratifiés.

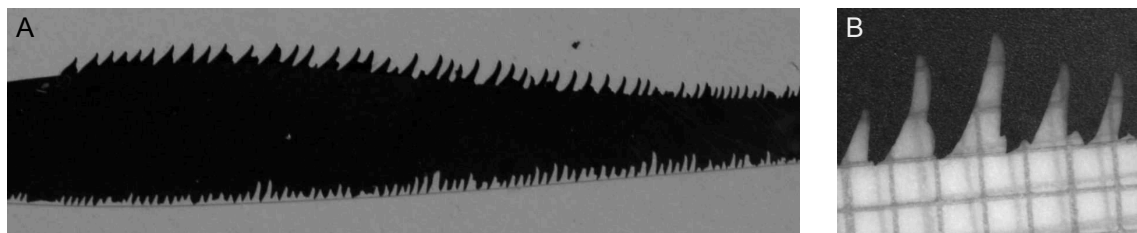
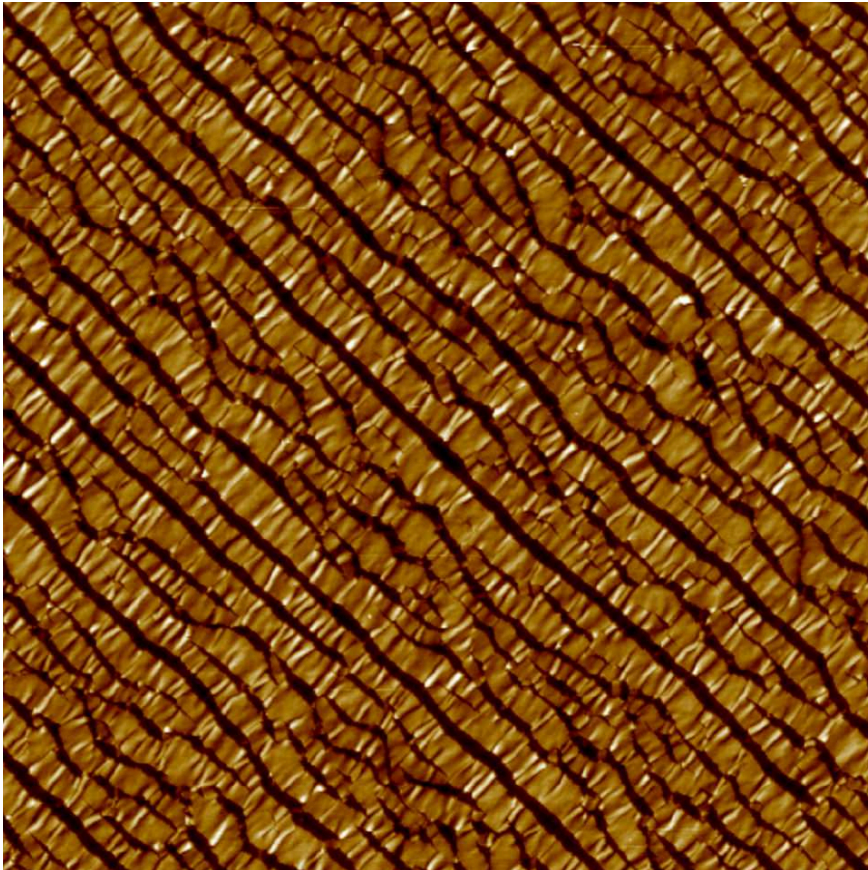


FIGURE 4.18: (A) Une instabilité couplant délamination, courbure et fissures conduit à la formation de dents dans la couche fragile. (B) Zoom sur la forme des dents.

CHAPITRE

5

Fissure sur substrat flexible



Couche nanométrique d'oxyde de zinc et d'argent déposée sur un substrat de polymère mis en traction uniaxiale.

La mécanique des couches minces sur substrat flexible est un sujet d'intérêt industriel croissant, motivé par le développement de l'électronique flexible (l'éclairage et photovoltaïque flexibles (figure 5.1A)). Pour un industriel comme Saint-Gobain, une potentialité prometteuse est de fonctionnaliser des surfaces en les recouvrant d'un film plastique (par exemple en déposant sur une surface de verre une feuille de polymère fonctionnalisée par une couche barrière d'oxyde ou une couche de faible émissivité). Les difficultés pour décrire la propagation de fissures dans la couche proviennent des contrastes de modules élastiques entre la couche mince rigide et le substrat de polymère, de la plasticité du substrat et de la faible adhésion entre la couche et le substrat. La compréhension de la mécanique est importante pour guider le design de structures plus complexes permettant de maintenir l'intégrité du film à grande déformation. Un défi pour les applications est notamment de maintenir la conductivité électrique des couches malgré les déformations imposées par le substrat. Dans un contexte plus fondamental, la compréhension du phénomène de fissuration sur un substrat flexible constitue une méthode prometteuse pour caractériser les propriétés mécaniques des films minces. Il est par exemple possible de déterminer les modules élastiques, la ténacité ou l'énergie d'adhésion d'une feuille de graphène à partir de l'observation de la propagation de fissures dans la feuille déposée sur un substrat de polymère mis en traction uniaxiale (Jiang *et al.* (2013)).

Les premières observations expérimentales de la fragmentation de films rigides déposés sur des substrats de polymère par microscopie optique *in-situ* (Leterrier *et al.* (1997*b,a*)) sont motivées par l'étude de couches barrières d'oxyde de silicium déposée sur du PET. En appliquant des modèles de transfert de contrainte parfaitement plastique développés par Hu & Evans (1989) pour modéliser la fissuration de films déposés sur des métaux ductiles, ces auteurs remontent à une valeur de cisaillement à l'interface qu'ils relient à la plasticité du substrat. Handge *et al.* (2000) observent les dépendances en loi de puissance de la taille des fragments en fonction de la déformation appliquée et examinent le cas plus général d'un transfert de contrainte non linéaire à l'interface. Frank *et al.* (2011) déterminent expérimentalement les champs de contrainte dans les fragments et la taille de déchargement par diffraction de rayons X. Thouless *et al.* (2011) examinent l'influence de la propagation des fissures dans le substrat sur la fragmentation. La fragmentation de dépôt ductile comme une monocouche de cuivre déposée sur un substrat polymérique conduit à des morphologies de fissures très différentes de celles des films d'oxyde. Lu *et al.* (2007) mettent en évidence le maintien de la conductivité électrique à grande déformation, importante pour les applications en électronique flexible. L'observation des fissures par microscopie électronique montre l'apparition de zones localisées où l'endommagement et le décollement de la couche coexistent.

Dans ce chapitre, nous nous intéresserons à la fissuration d'un film mince de faible émissivité développé par Saint-Gobain. Cet empilement original pré-

sente une couche d'argent entourée de deux diélectriques d'oxyde de zinc (figure 5.1B). L'argent permet d'obtenir une réflexion efficace de l'infra-rouge tout en gardant une bonne transmission dans le visible. Les couches de ZnO favorisent l'adhésion de l'argent et limitent son oxydation au contact de l'air. Nous étudierons dans un premier temps un système modèle composé d'une monocouche d'oxyde de zinc sur un substrat d'ETFE. Nous verrons ensuite comment l'ajout d'une couche d'argent ductile change les propriétés de fissuration de l'empilement.

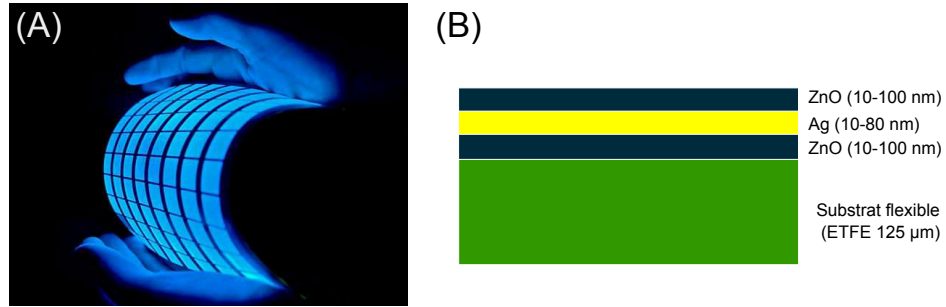


FIGURE 5.1: (A) Exemple d'application de couches minces sur substrat flexible (diode électroluminescente organique OLED). (B) Empilement modèle typique présentant une faible émissivité : une couche d'argent ductile en sandwich entre deux couches diélectriques fragiles.

Dans la plupart des applications, les substrats sont principalement sollicités en flexion du fait de leur faible épaisseur. Les couches minces solidaires du substrat sont alors soumises à de la traction (sur le rayon de courbure externe du substrat) ou à de la compression (sur le rayon de courbure interne). À cause de la condition de développabilité, des courbures importantes ne peuvent se faire que dans une seule direction si l'amplitude est importante (condition de courbure de Gauss nulle). Nous testerons ainsi les propriétés mécaniques en traction uniaxiale. Du fait de la faible épaisseur du substrat, les déformations en traction que nous imposons correspondent à des rayons de courbure très petits. Par exemple, les déformations typiques de rupture de 1% observées dans un film d'oxyde de zinc déposé sur un substrat d'épaisseur $h_s = 100 \mu\text{m}$ correspondent à un rayon de courbure typique de $R = h_s/\epsilon = 1 \text{ cm}$. Même si la déformation critique à la rupture semble faible, les conditions d'opérations ne sont donc pas complètement irréalistes, les dispositifs envisagés ayant rarement besoin d'être roulés en dessous du centimètre.

En introduction, nous étudierons deux systèmes macroscopiques modèles pour comprendre les ingrédients physiques qui gouvernent la fissuration sur un substrat flexible (section 5.1). Nous introduirons ensuite le système expérimental modèle d'une monocouche fragile d'oxyde déposée sur un substrat d'ETFE (Ethylene tetrafluoroethylene) et nous étudierons le processus de fragmentation de la couche (section 5.2). Nous décrirons les modèles de transfert de

contraintes entre le film et le substrat (modèle du 'shear lag') développés pour décrire les conditions de propagation des fissures ainsi que les distances d'interaction entre fissures (section 5.3) et nous proposerons une extension à un modèle élasto-plastique pour tenir compte de la localisation de la déformation dans le substrat (section 5.4). Nous décrirons ensuite la vitesse de propagation des fissures dans le film en fonction du chargement et de la position des fissures voisines (section 5.5). Enfin, nous nous intéresserons à la morphologie de fissures dans des empilements comportant une couche métallique d'argent ductile (section 5.6). Dans le chapitre suivant, nous décrirons les problèmes de délamination engendrés par les déformations compressives transverses du substrat.

5.1 Introduction : Fragmentation macroscopique d'une couche de peinture

Afin d'illustrer les ingrédients physiques pertinents auxquels nous sommes confrontés, nous présentons deux expériences macroscopiques préliminaires représentant deux cas limites pour la propagation : une couche rigide de peinture déposée sur un substrat élastique très mou (5.1.1) et le même film déposé sur un substrat dont le module de Young est similaire à celui de la couche (5.1.2).

5.1.1 Une couche de peinture sur une membrane de latex.

Évelyne Kolb *et al.* (2002) ont étudié la fragmentation d'une couche de peinture relativement fine et rigide (de module de Young $E_f = 1$ GPa, d'épaisseur $h_f = 100\mu\text{m}$) déposée sur un substrat mou et épais (de module de Young $E_s = 1$ MPa et d'épaisseur $h_s = 4$ mm). Le problème est unidimensionnel car la largeur de la bande de peinture (2 cm) est faible devant sa longueur (20 cm). Le système est mis en traction uniaxiale. Nous observons une rupture séquentielle. Les fissures se propagent à peu près au milieu de chaque fragment de couche formé par les fissures qui se sont propagées précédemment (figure 5.2).

Effet du rapport des modules : un argument en loi d'échelle.

Estimons la taille de déchargement élastique autour d'une fissure lorsque le substrat est moins rigide que le film. En régime permanent (pour des fissures suffisamment longues), le confinement de l'énergie élastique est dû à la rigidité du substrat. Lorsque le substrat est moins rigide que le film, la taille de déchargement élastique autour des fissures ℓ est grande et est fixée par la capacité du substrat à se déformer. En effet cette ouverture de fissure relâche une énergie dans le film $\mathcal{E}_f \sim E_f \ell h_f \epsilon^2$, mais produit un cisaillement dans le substrat $\delta u / \ell$ avec $\delta u \sim \epsilon \ell$ (déplacement du film). Le cisaillement ajoute une énergie $\mathcal{E}_s \sim E_s \ell^2 \epsilon^2$. La taille ℓ est donc obtenue en minimisant $(-E_f h_f \ell + E_s \ell^2) \epsilon^2$ ce

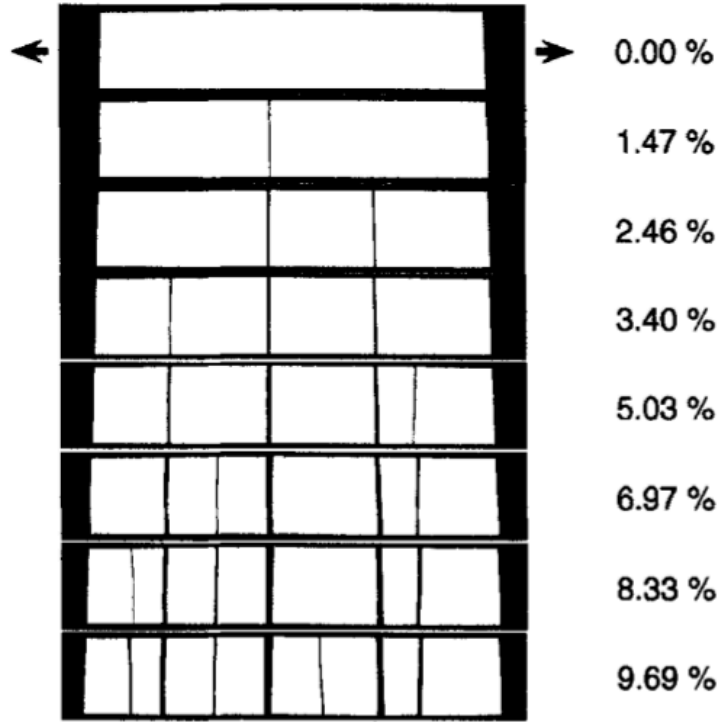


FIGURE 5.2: Fragmentation périodique d'une couche de peinture sur un substrat élastique de module de Young très inférieur à celui de la couche (image de Kolb *et al.* (2002)). La taille d'interaction élastique est de l'ordre de la taille du système. Dans cette limite, les fissures apparaissent au milieu de chaque fragment précédent.

qui conduit à $\ell \sim h_f E_f / E_s$. Ce raisonnement est valable dans la limite où la taille de déchargement élastique ℓ est très inférieure à l'épaisseur du substrat ($\ell \ll h_s$).

La taille d'interaction élastique ℓ dépend donc linéairement du rapport des modules E_f / E_s . La longueur de déchargement élastique autour du bord libre d'une fissure est donc de l'ordre de $h_f E_f / E_s = 10$ cm, comparable à la longueur de la bande. Dans ces conditions, les fissures interagissent entre elles. La contrainte est maximale au centre de la bande, et chaque nouvelle fissure se propage au milieu du fragment précédent si la densité de défauts dans le film est raisonnablement homogène. Notons qu'ici le raisonnement proposé devrait être modifié car il est basé sur l'hypothèse $\ell \ll h_s$. Malgré ces effets de taille finie, il n'en reste pas moins que ℓ est très grand dans ce système.

Le rapport E_f / E_s est une estimation en loi d'échelle de $\gamma(D_1, D_2)$ que nous avons introduit dans l'équation 2.9. Cette approximation n'est raisonnable que lorsque D_1 est proche de 1.

5.1.2 Une couche de peinture sur un substrat de polymère.

Déposons une couche de peinture ($E_f = 1$ GPa, $h_f = 100$ μm) sur un substrat d'ETFE ($E_s = 850$ MPa, $h_s = 125$ μm). La couche est déposée sous forme de spray sur un substrat traité par plasma à oxygène afin d'augmenter l'énergie d'adhésion entre la couche et le substrat. Le module du substrat est mesuré à partir de la courbe de charge contrainte-déformation, celui de la couche par nano-indentation d'une couche de peinture déposée sur un substrat rigide. Lorsque la couche de peinture déposée sur le substrat de polymère est mise en traction uniaxiale, les fissures se propagent séquentiellement. La propagation a lieu sans organisation spatiale marquée. Contrairement à l'exemple précédent, la taille d'interaction élastique est de l'ordre de l'épaisseur de la couche ($\ell \sim h_f E_f / E_s \sim 120 \mu\text{m}$), très inférieure à la longueur caractéristique du système (20 cm). La propagation est ainsi dictée par la nucléation des fissures et la distribution statistique de la taille des défauts dans la couche (figure 5.3A). Au-dessus d'une déformation critique, le taux de restitution d'énergie excède l'énergie interfaciale et les fragments finissent par délaminer. Le front de délamination (de couleur laiteuse visible sur la figure 5.3A) se propage lorsque l'on augmente la déformation du substrat. Lorsque la couche est complètement délaminée, le phénomène de rupture cesse puisque le transfert de contrainte entre la couche et le substrat est nul.

L'effet de l'énergie interfaciale est visible sur les motifs de fissures obtenues à grande déformation. Une couche déposée directement sur un substrat non traité délamine pour une plus petite déformation et présente donc moins de fissures (figure 5.3B) qu'une couche déposée sur un substrat traité par plasma (figure 5.3C) pour laquelle l'adhésion entre la couche et le substrat est renforcée. Le motif final de fragmentation est donc déterminé par la distribution statistique des défauts et par la délamination.

Ces résultats sont en accord qualitatif avec les simulations numériques conduites par Andrés León Baldelli *et al.* (2013), Baldelli (2013) à l'Institut Jean d'Alembert sur la fragmentation uniaxiale qui observe la propagation de fissure au-dessus d'une déformation critique puis la progression d'un front de délamination à partir des extrémités de chaque fragment (figure 5.3D).

5.1.3 Bilan : influence de la longueur élastique de déchargement sur la fragmentation

Au cours du chargement, nous observons donc deux comportements très différents de fragmentation en fonction du rapport de la taille des fragments H sur la taille de décharge élastique ℓ .

- Pour de grands H/ℓ , les fissures n'interagissent pas entre-elles et la fragmentation est pilotée par les défauts (régime 1 de la section 5.1.2).
- Lorsque H/ℓ est de l'ordre de l'unité, les fissures interagissent et la contrainte est maximale au centre du fragment, entraînant la fragmen-

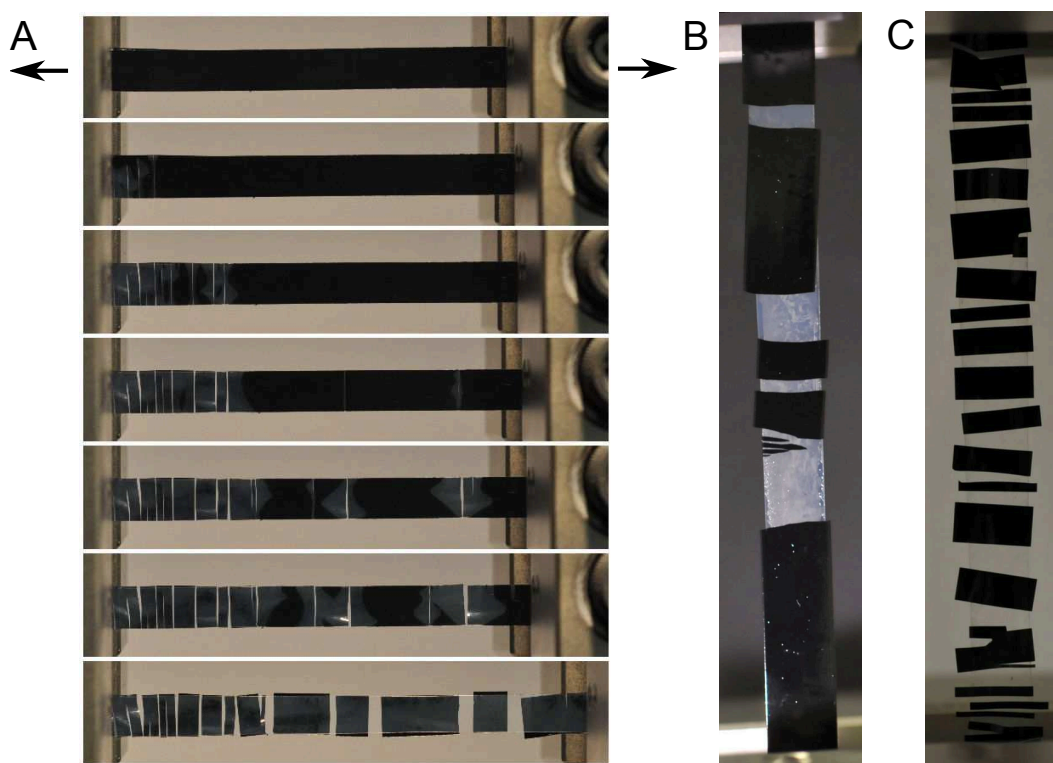


FIGURE 5.3: (A) Fragmentation périodique d'une couche de peinture déposée sur un substrat d'ETFE traité par plasma à oxygène de module de Young proche de celui de la couche. La fragmentation est observée du côté du substrat non recouvert par la couche afin de visualiser la progression de la zone délaminée (zone laiteuse). La taille d'interaction élastique est petite devant celle de l'échantillon. La position des nouvelles fissures est dictée par la distribution statistique des défauts. (B) Une couche déposée directement sur le substrat d'ETFE présente moins de fissures qu'une couche dont l'adhésion avec le substrat a été renforcée par un traitement plasma (C). À grande déformation, les fragments pivotent en raison du frottement des fragments sur le substrat.

tation périodique de fragments également espacés (régime 2 de la section 5.1.1).

- Nous notons également que pour des chargements importants, la délamination entre la couche et le substrat annule le transfert de contrainte et la fragmentation stoppe (régime 3).

La taille de déchargement élastique ℓ est d'autant plus grande que le module de Young du substrat est faible devant celui de la couche. Nous allons nous servir de ces observations pour décrire la propagation et l'interaction des fissures dans une monocouche fragile d'oxyde de zinc. Au cours de la fragmentation de la monocouche, les échantillons passent successivement du premier au second régime.

5.2 Monocouche fragile sur substrat plastique : observations expérimentales

Des couches nanométriques d'oxyde de zinc (ZnO) sont déposées par pulvérisation cathodique magnétron sur des substrats plastique d'ETFE. Les dépôts sont effectués dans un démonstrateur semi-industriel roll-to-roll (Coflex 600) au Fraunhofer Institut für Elektronenstrahl und plasmatechnik (FEP Dresden). L'épaisseur des couches est contrôlée in-situ en mesurant la transmission et réflexion optique ainsi que la résistance électrique des couches.

Nous caractériserons les propriétés mécaniques du substrat puis nous présenterons les principales observations expérimentales de la fragmentation de la couche d'oxyde lorsqu'un échantillon est mis en traction uniaxiale. Nous observons le processus de fragmentation in situ à l'AFM, au MEB et par microscopie optique.

5.2.1 Propriétés mécaniques du substrat

Caractérisons plus précisément les propriétés de l'ETFE utilisé dans l'expérience préliminaire précédente. La courbe de charge de la contrainte nominale σ_n en fonction de la déformation nominale ϵ_n du substrat (ETFE) fait apparaître trois régimes distincts (figure 5.4). Pour des faibles vitesses de sollicitation ($v = 0.25\%/s$), le substrat se déforme élastiquement pour une déformation inférieure à 2.1 % avec un module de Young $E_{s1} = 850$ MPa. Pour des déformations intermédiaires de 2.1 % à 20 %, nous observons une déformation plastique caractérisée par un module de Young effectif de $E_{s2} = 70$ MPa. Pour des déformations supérieures à 20 %, nous observons une longue zone d'étirage où le substrat se déforme plastiquement avec une contrainte $\tau_p \sim 23$ MPa. Pour une vitesse de sollicitation plus importante, le polymère est plus rigide car les chaînes de polymère n'ont pas le temps de se réorienter lors de l'extension. Cependant la courbe contrainte-déformation varie peu avec la vitesse. Par la

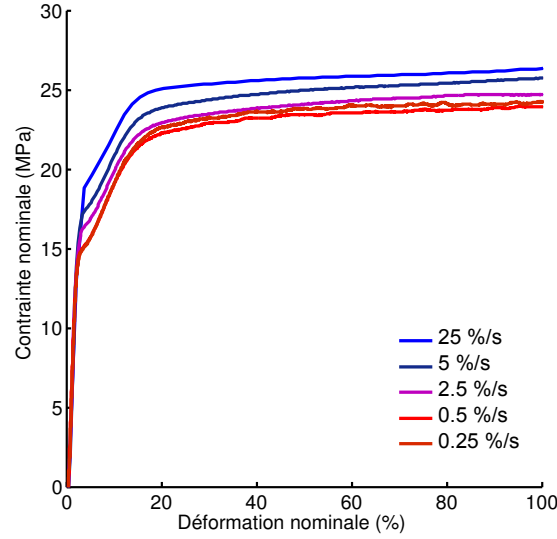


FIGURE 5.4: Contrainte nominale en fonction de la déformation nominale du substrat d'ETFE nu pour différentes vitesses de chargement.

suite, nous nous placerons à une vitesse faible et nous négligerons les effets de viscosité du polymère.

5.2.2 Fragmentation uniaxiale : 3 régimes

Nous étudions la fragmentation d'une monocouche d'oxyde de zinc d'épaisseur variable (30, 50, 70 et 100 nm) déposée sur un substrat d'ETFE. Les échantillons (bande rectangulaire de 50 mm × 5 mm × 125 μ m) sont placés dans une micro-machine universelle de traction (Deben). Ils sont soumis à un essai de traction uniaxiale à faible vitesse de sollicitation ($v \sim 0.1\%/s$). Le processus est imagé au centre de l'échantillon sous chargement par microscopie optique.

Observons le processus de fragmentation d'une monocouche de ZnO de 50 nm d'épaisseur (figure 5.5). Au-delà d'une déformation critique ($\epsilon_c \sim 1\%$), des fissures apparaissent dans la couche d'oxyde. Les fissures se propagent perpendiculairement à la direction de sollicitation et traversent la largeur de l'échantillon avec une vitesse très supérieure à la vitesse d'acquisition des images. L'observation des fissures par microscopie à force atomique et par microscopie électronique à balayage indique que la fissure traverse toute la couche ('channel crack') et qu'elle ne se propage pas dans le substrat. Le problème est donc unidimensionnel et nous pouvons caractériser la fragmentation par la largeur des fragments de la couche d'oxyde délimitée par deux fissures transverses.

Au-dessus du seuil de propagation, la fragmentation est séquentielle comme dans le cas de la peinture (dans la section 5.1.2). La densité de fissures aug-

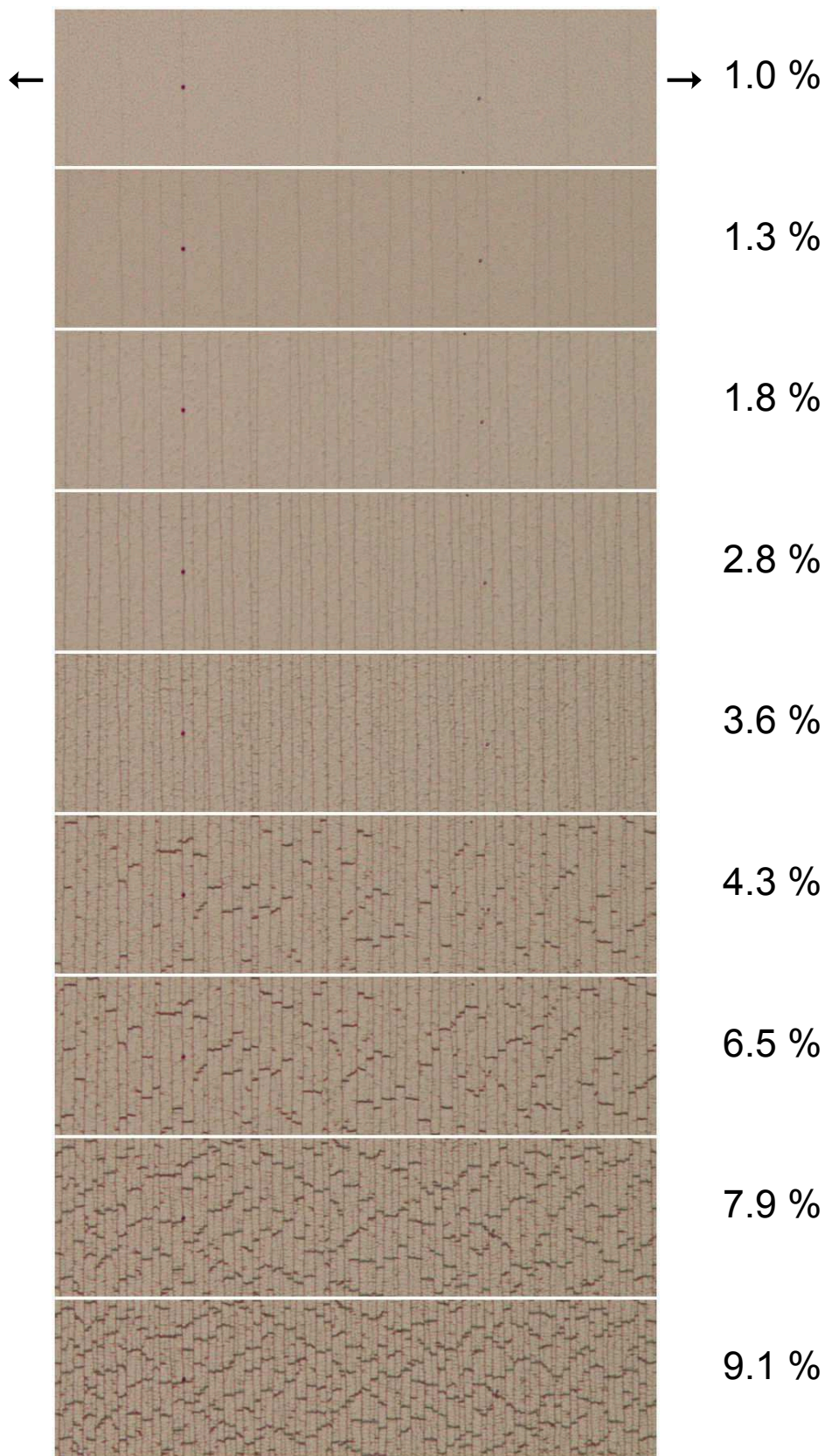


FIGURE 5.5: Une monocouche de 50 nm de ZnO déposée sur un substrat d'ETFE est mise en traction uniaxiale. La densité de fissures augmente avec la déformation. Au-delà d'une déformation de 4.3%, la compression transverse du substrat entraîne l'apparition de cloques de délamination.

mente avec la déformation. Pour des chargements plus importants ($\epsilon = 4.2\%$), la déformation transverse induite par l'écoulement plastique du substrat entraîne l'apparition de cloques de délamination. Nous nous intéresserons à cette compression transverse dans le chapitre suivant. Pour des déformations très importantes ($\epsilon > 20\%$), nous observons un arrêt du processus de fragmentation et une saturation de la distance entre les fissures.

Comme le module de Young du substrat ($E_s = 850$ MPa) est très inférieur au module du film d'oxyde $E_f = 100 \pm 20$ GPa (Zabels *et al.* (2010)), la taille de déchargement élastique est d'ordre $\ell \sim h_f E_f / E_s = 115 h_f$, très grande devant l'épaisseur de la couche. Cette longueur est donc de l'ordre de quelques microns pour les épaisseurs considérées, ce qui est faible devant la taille entre fissures à faible déformation (régime 1) puis rapidement de l'ordre de cette taille pour des déformations plus importantes (régime 2).

Mesurons la largeur des fragments en fonction de la déformation macroscopique imposée au substrat pour différentes épaisseurs de couches d'oxyde (figure 5.6). La déformation imposée est mesurée localement en observant le déplacement de repères solidaires de la couche. La fragmentation à grande déformation ($\epsilon > 20\%$) est mesurée lors d'une expérience différente sur une machine de traction Zwick (la micro-machine de traction Deben étant peu adaptée aux grandes déformations). Traçons la distance entre fissures en échelle log-log (insert de la figure 5.6). Nous distinguons trois régimes de fragmentation en fonction de la déformation.

- Un premier régime de déformation (Régime 1 : $\epsilon < 2\%$), pour lequel nous ne voyons pas de dépendance simple avec la déformation. Nous observons une fragmentation statistique sans organisation spatiale identifiable.
- Un régime intermédiaire (Régime 2 : $\epsilon \in [2 - 10]\%$) où les fissures apparaissent au milieu des fragments pré-existants.
- Un arrêt de la fragmentation pour des grandes déformations avec une saturation de la largeur des fragments (Régime 3 : $\epsilon > 20\%$). Une caractéristique étonnante est le maintien de l'adhésion des fragments au substrat à grande déformation. Contrairement au cas étudié macroscopiquement dans la section précédente, l'arrêt de la fragmentation n'est pas causé par le délaminage entre la couche et le substrat.

Nous allons décrire ces trois régimes de propagation en invoquant la statistique des défauts dans le premier régime (section 5.2.3), l'interaction élastique entre fissures dans le second régime (section 5.2.4) et la localisation de la déformation dans les fissures due à la plasticité du substrat dans le dernier régime (section 5.2.5).

5.2.3 Fissures isolées (régime 1) : un problème de défauts

La première fissure peut se propager lorsque l'énergie élastique relâchée lors de la propagation de la fissure dans la couche est supérieure à l'énergie de rupture de la couche. D'après l'équation 2.9, le critère de propagation est

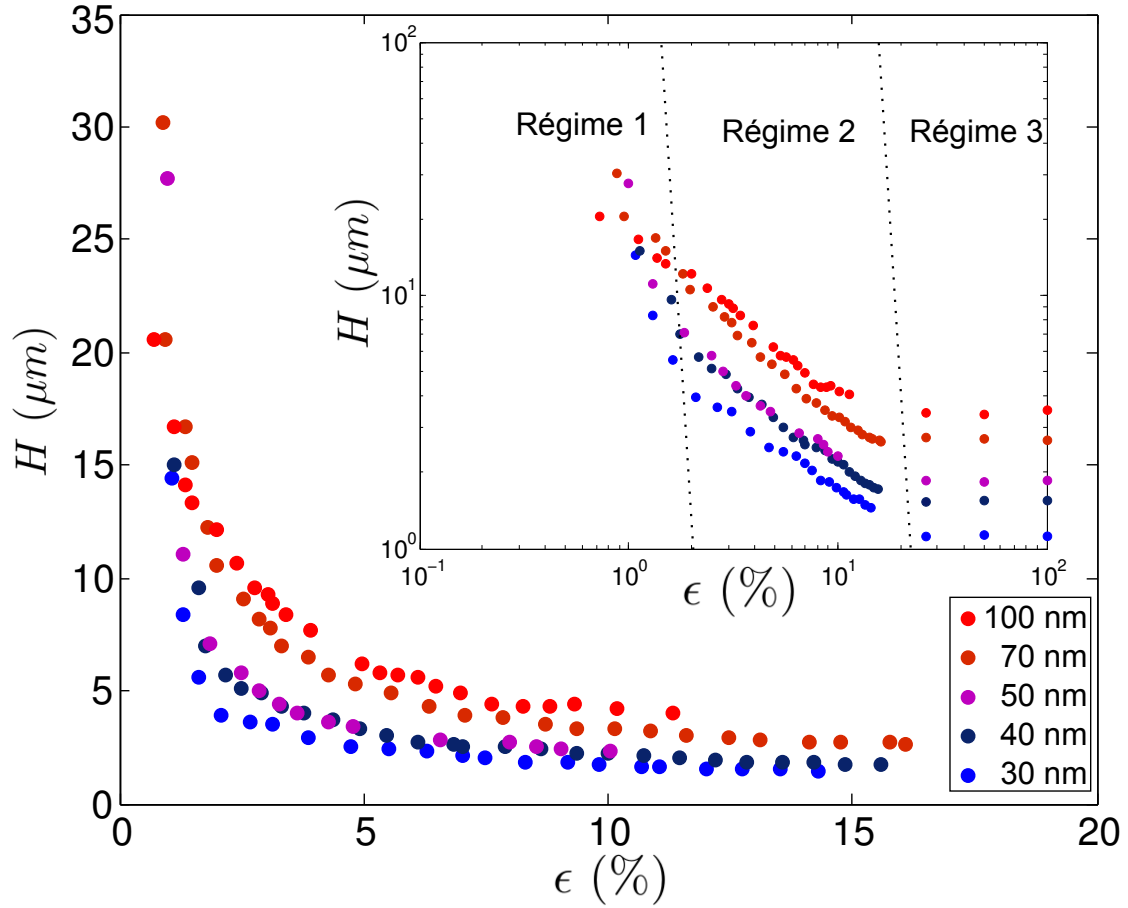


FIGURE 5.6: Longueur moyenne des fragments H en fonction de la déformation imposée pour des monocouches d'oxyde de zinc de différentes épaisseurs.

$\gamma h_f^2 \sigma^2 (1 - \nu_f^2) / E_f > G_c h_f$. Il faut néanmoins que la fissure nucléée à partir des défauts de la couche.

Il y a donc deux déformations critiques indépendantes :

- un seuil de nucléation influencé par la distribution de défauts dans la couche
- un seuil de propagation de la fissure en régime permanent.

Essayons de caractériser indépendamment ces deux seuils.

Caractérisation de la distribution de défauts

Les plus gros défauts se propagent pour les plus faibles chargements. Le nombre de défauts capables de se propager augmente ainsi que la densité de fissures (figure 5.6) pour des chargements croissants. Pour de faibles déformations (et de faibles densités de fissures), le phénomène est gouverné par

la distribution statistique des défauts dans la couche, dans un régime où les fissures n'interagissent pas entre elles ($H \gg \gamma h_f$).

Comment pouvons-nous caractériser cette densité de défauts? Une description usuelle consiste à attribuer une distribution de contrainte critique correspondant à la distribution de défauts dans l'échantillon. Les points de nucléation sont décrits comme une juxtaposition de N éléments indépendants. La rupture de l'élément le plus faible entraîne la propagation de la fissure. À chaque élément correspond une probabilité de rupture $P_0(\sigma)$ pour une contrainte σ donnée. La probabilité de survie de N éléments est donc de $(1 - P(\sigma))^N$ et la probabilité de rupture s'écrit donc :

$$\begin{aligned} P_R(\sigma) &= 1 - (1 - P(\sigma))^N = 1 - \left(1 - \exp\left(-N \ln\left(\frac{1}{1 - P_0(\sigma)}\right)\right)\right) \\ &= 1 - \exp(-N f(\sigma)) \end{aligned}$$

où $f(\sigma) = \ln\left(\frac{1}{1 - P_0(\sigma)}\right)$ est une fonction qu'il faut déterminer empiriquement. Une description largement utilisée qui rend bien compte de la dispersion expérimentale des contraintes de rupture des matériaux fragiles est due à Weibull : $f(\sigma) = (\sigma/\beta)^\alpha$ où β est une contrainte typique. En suivant Leterrier *et al.* (1997b), appliquons cette description à la propagation des fissures dans la couche. Considérons un élément de taille typique H_0 , le nombre d'élément N est donc la longueur du fragment H divisée par H_0 et nous obtenons l'évolution de la taille des fragments en fonction de la contrainte σ $\log(H/H_0) = \alpha \log(\beta) - \alpha \log(\sigma)$. Nous déterminons α et β en ajustant ces paramètres sur l'évolution de la taille des fragments pour de faibles déformations. Notons que ces coefficients ne sont pas du tout universels et varient d'une épaisseur à l'autre. La distribution de défauts variant avec l'épaisseur de la couche d'oxyde, nous allons contourner le problème de la nucléation en amorçant les fissures.

Condition de propagation

Plusieurs facteurs peuvent influencer sur la déformation critique : les conditions énergétiques de propagation de la fissure varient avec l'épaisseur de la couche, la distribution de taille et de forme des défauts n'est pas connue et l'énergie dissipée lors de la propagation de la fissure G_c peut varier pour des films très minces (effet de taille). Afin de s'affranchir de la distribution de défauts et d'observer la condition de propagation en régime permanent, nous introduisons des amorces de fissure en indentant localement la couche. Si nous considérons que notre procédure d'indentation permet la propagation des fissures dès que la déformation est supérieure à la déformation critique, la condition énergétique de propagation pilote le phénomène et nous nous attendons à une dépendance de la déformation critique ϵ_c proportionnelle à $\sqrt{h_f}$ à partir de la relation $E_f \gamma h_f^2 \epsilon_c^2 / (1 - \nu_f^2) = G_c h_f$. La déformation critique de propagation des fissures à partir de l'indent décroît avec l'augmentation de

l'épaisseur de la couche (figure 5.7B). La décroissance est compatible avec une description en $\sqrt{h_f}$, même si la faible gamme d'épaisseur considérée ne permet pas de conclure.

Estimons l'énergie de rupture de la couche à partir de cette relation. Nous prenons $\nu_f = 0.35$, $\gamma = 115$ pour tenir compte du grand rapport entre module du film et du substrat. Nous obtenons alors l'énergie de rupture de la couche d'oxyde $G_c = 25 \text{ J/m}^2 \pm 10$ légèrement supérieure à l'énergie de rupture d'une couche similaire obtenue par nanoindentation par Chen & Bull (2007) ($G_c = 10 \text{ J/m}^2 \pm 5$).

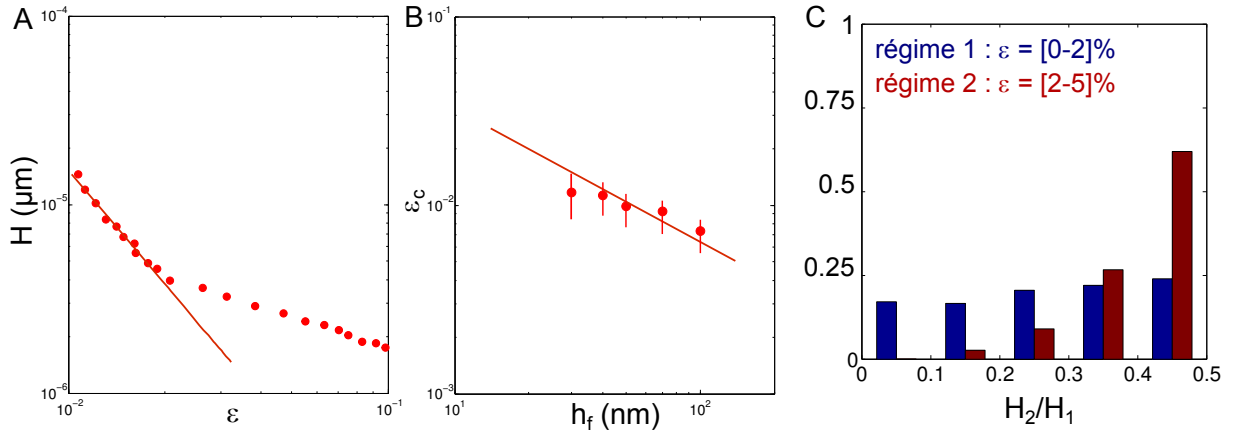


FIGURE 5.7: (A) Caractérisation de la distribution de défauts : dans le régime 1, nous pouvons déterminer les coefficients de Weibull, α et β décrivant la distribution de défauts. Pour une couche de 30 nm d'épaisseur, nous obtenons $\alpha = 2$ et $\beta = 3.9$ GPa (B) Condition de propagation en régime permanent : déformation critique de propagation de la première fissure ϵ_c d'une couche indentée en fonction de l'épaisseur de la couche d'oxyde. La ligne brune est la condition énergétique pour la propagation en $\sqrt{h_f}$. (C) Comparons la taille du plus petit fragment fils H_2 au fragment père H_1 pour une centaine de fragmentations : la fréquence d'apparition au centre du fragment ($H_2/H_1 = 0.5$) est beaucoup plus élevée dans le régime 2 (en rouge pour $\epsilon \in [2 : 5]\%$) que dans le régime 1 (en bleu pour $\epsilon \in [0 : 2]\%$).

5.2.4 Interaction élastique entre fissures (régime 2)

Lorsque la densité de fissures augmente, la décharge élastique autour des fissures devient comparable à la taille des fragments et les fissures interagissent. Nous nous attendons à ce que cette transition ait lieu lorsque la taille moyenne des fragments H devient de l'ordre de γh . Comment pouvons nous déterminer cette condition ?

Un critère permettant de déterminer si les fissures interagissent ou non est

la position d'apparition des nouvelles fissures. Tant que la distance interfissure est grande devant la distance d'interaction élastique, la propagation d'une fissure est dictée par la distribution des défauts et la position d'une nouvelle fissure est indépendante de la propagation des fissures précédentes. Traçons le rapport de taille du plus petit fragment fils H_2 au fragment père H_1 (figure 5.7C). La distribution est très plate lorsque les fissures n'interagissent pas, la probabilité de propagation étant distribuée uniformément dans la couche. Pour des déformations plus importantes, les fissures interagissent et la distribution se pique autour de $1/2$. Cette description est d'autant plus pertinente que la distribution de défauts est alors de plus en plus homogène car les défauts de grande taille de la queue de distribution se sont déjà propagés. Pour de telles déformations, la position de la nouvelle fissure n'est plus dictée par la distribution de défauts mais par l'état de décharge élastique dans le substrat. Nous observons donc la propagation au centre du pavé précédent comme dans l'expérience préliminaire de la couche de peinture sur du latex (section 5.1.1).

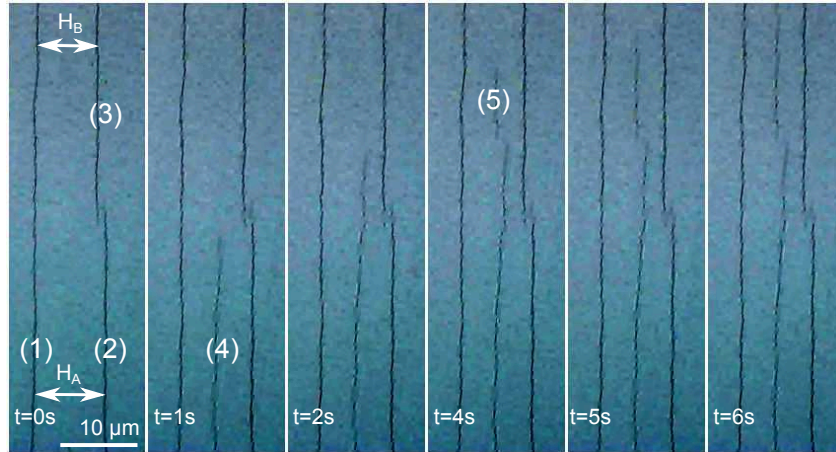


FIGURE 5.8: Propagation d'une fissure soumise à des conditions aux limites particulières pour une déformation imposée.

Observons la propagation d'une fissure soumise à des conditions aux limites plus complexes (figure 5.8) : la taille du fragment H_A définie par les fissures (1) et (2) dans la partie inférieure de l'image est supérieure à la taille du fragment H_B défini par les fissures (1) et (3) dans la partie supérieure de l'image. La nouvelle fissure (4) se propage au centre du fragment H_A puis s'arrête devant la fissure (3). Une nouvelle fissure (4) se propage alors au centre de H_B . Notons que l'arrêt de la fissure (3) n'est pas instantané, ce qui indique que la propagation n'est pas toujours quasi-statique et présente une certaine inertie ou dépend de la visco-élasticité du substrat. Nous réexaminerons la dynamique de la propagation de ce cas particulier dans la section 5.5.

Nous allons décrire la variation de la densité de fissures dans ce régime

dans la section suivante en introduisant un modèle élastique de transfert de contrainte entre la couche et le substrat.

5.2.5 Saturation plastique (régime 3) : localisation de la déformation dans le substrat

Dans la description élastique, toutes les fissures sont équivalentes et nous nous attendons donc à ce que toutes les ouvertures de fissures soient les mêmes indépendamment de leurs histoires. Expérimentalement, nous remarquons cependant une grande distribution d'ouverture des fissures. Les fissures apparues à faible déformation sont plus ouvertes que les fissures apparues plus tard. Mesurons à l'AFM cette ouverture au cours du chargement (figure 5.9A) pour une monocouche d'oxyde de 100 nm. L'ouverture des fissures augmente assez linéairement avec la déformation macroscopique appliquée. Les fissures anciennes sont donc plus ouvertes que les suivantes et le système garde en mémoire la hiérarchie de la fragmentation. En mesurant précisément l'ouverture des fissures, nous pouvons donc retrouver la déformation critique de propagation de chaque fissure.

Cet effet de mémoire est dû à la plasticité du substrat qui entraîne la localisation de la déformation dans les fissures. Nous pouvons estimer la déformation imposée à la couche d'oxyde en soustrayant à la déformation macroscopique imposée celle correspond à l'ouverture des fissures (figure 5.9B). Nous observons que la déformation effectivement imposée à la couche ϵ_c est rapidement inférieure à la déformation macroscopique imposée au substrat ϵ_0 à cause de la localisation de la déformation dans l'ouverture des fissures.

Nous pouvons donc retrouver l'histoire de la propagation à partir d'une image fragmentée et estimer pour quelle déformation chaque fissure est apparue.

Une autre preuve expérimentale de la localisation de la déformation dans le substrat est obtenue en attaquant la couche d'oxyde fragmentée à l'acide. Nous pelons alors la couche et observons le substrat nu au microscope optique et à l'AFM (figure 5.10). Nous observons que le substrat reste déformé irréversiblement au niveau des fissures. Cette déformation est (en surface) localisée dans l'ouverture des fissures, les parties de polymère recouvertes par la couche d'oxyde étant protégées par la grande rigidité de la couche.

C'est cet effet de localisation de la déformation dans l'ouverture des fissures qui est à l'origine de la saturation du phénomène de fissuration à grande déformation. La déformation est alors complètement encaissée par le substrat et le transfert de contrainte entre la couche et le film n'augmente plus lorsque l'on augmente la déformation macroscopique. Nous mesurons la taille des fragments après une déformation à 50 % et 100 % pour les différentes épaisseurs de couches d'oxyde (figure 5.11 obtenue après décharge). La longueur finale des fragments augmente quasi-proportionnellement avec l'épaisseur de la couche. Notons une légère déviation, les rapports de la longueur du fragment à l'épais-

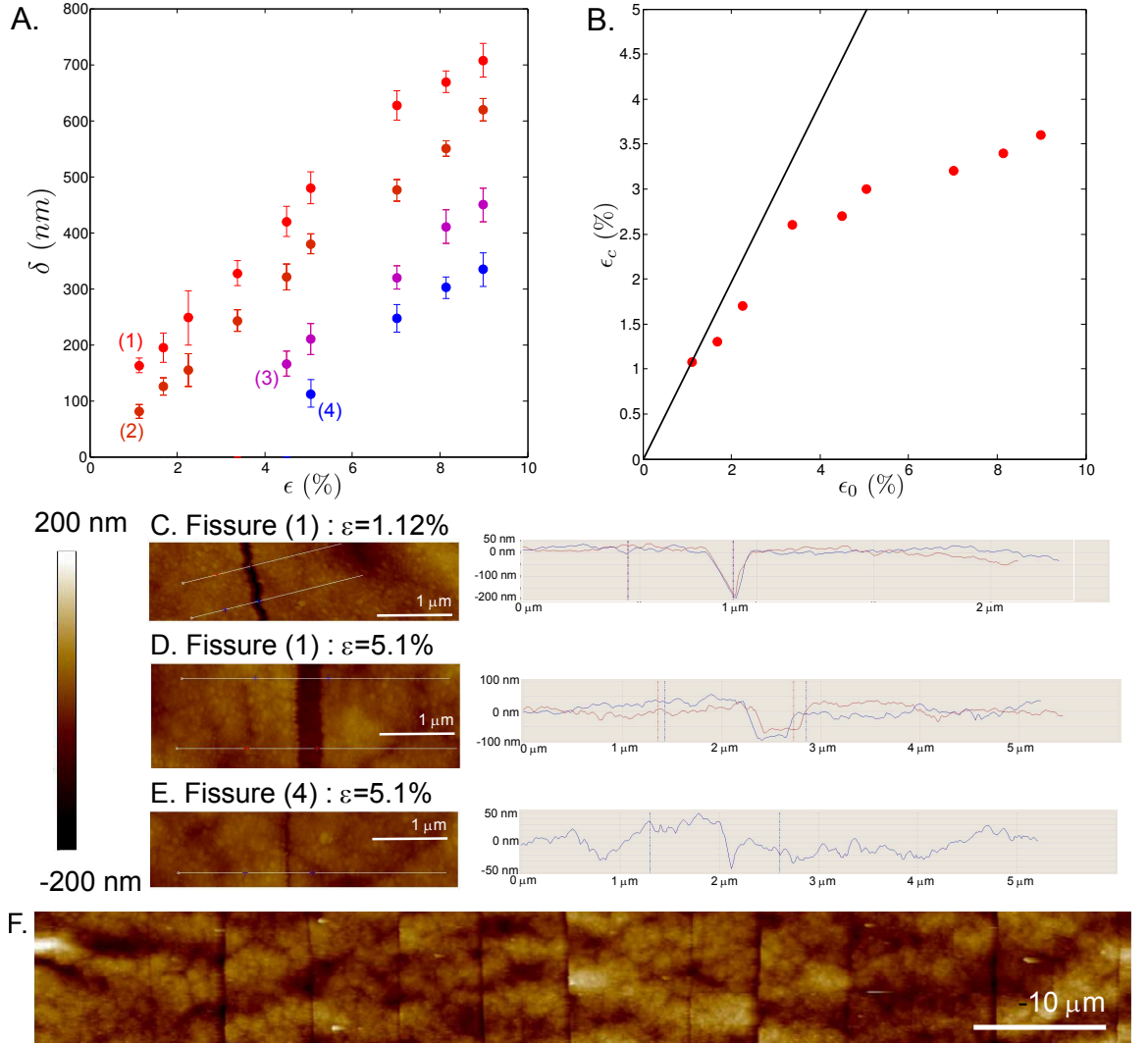


FIGURE 5.9: (A) Ouvertures δ de quatre fissures apparues pour des déformations différentes en fonction de la déformation macroscopique imposée au substrat. Les fissures (1), (2), (3), (4) apparaissent pour des déformations critiques croissantes. Les ouvertures (définies comme la distance entre les deux points correspondant à 0.9 fois la hauteur du plateau à gauche et à droite de la fissure) sont mesurées in-situ à l'AFM. (B) La déformation effectivement imposée à la couche ϵ_c est rapidement inférieure à la déformation macroscopique imposée au film ϵ_0 . Pour illustrer la méthode de mesure nous représentons les images AFM et les profils correspondant pour la fissure (1) à 1.12% (C) et 5.1% (D). À la même déformation et à la même échelle, l'ouverture de la fissure (4) venant d'apparaître et près de 5 fois plus faible (E). (F) À grande déformation, nous pouvons revenir à l'ordre d'apparition des fissures en fonction de leur ouverture et estimer la déformation critique de chaque fissure.

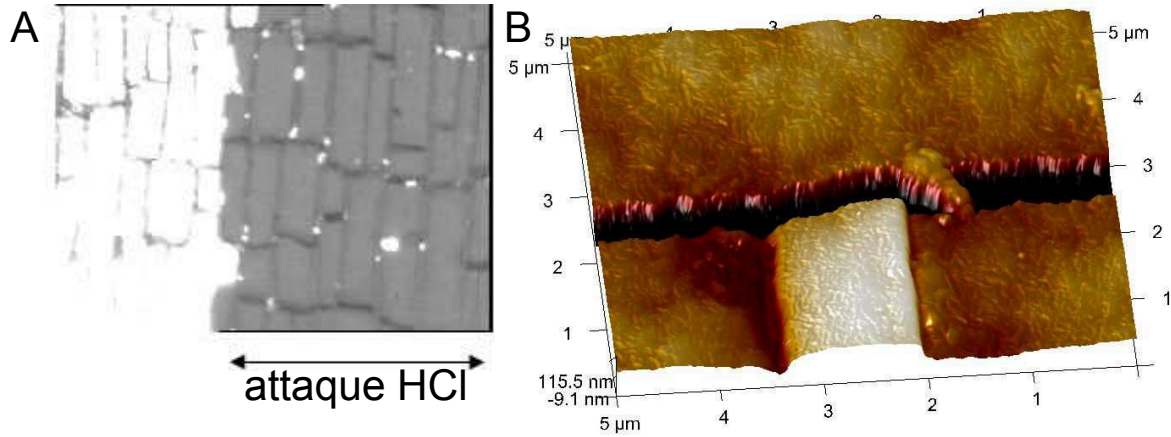


FIGURE 5.10: Retirons la couche après fragmentation par une attaque chimique à l'acide. (A) Nous observons que la déformation irréversible du substrat est localisée dans les ouvertures de fissures par microscopie optique. (B) L'observation in situ par AFM du substrat nu après fragmentation et pelage de la couche montre une concentration des déformations dans les zones fissurées. Nous observons également la déformation irréversible du substrat en compression avec la formation de cloques.

seur de la couche étant plus important pour une couche fine que pour une couche plus épaisse (figure 5.11E).

5.2.6 Bilan des observations expérimentales

Nous rappelons les principales caractéristiques du système expérimental dans le tableau 5.1.

Film (ZnO)	E_f	100 GPa
	ν_f	0.35
	h_f	[30 – 100] nm
	G_c	25 J/m ²
Substrat (ETFE)	E_s	850 MPa
	ν_s	0.45
	h_s	125 μm
	ϵ_p	2.1%
	ℓ	115 h_f

Tableau 5.1: Propriétés expérimentales de l'empilement d'oxyde de zinc sur un substrat d'ETFE.

Nous observons trois régimes de propagation à faible déformation, défor-

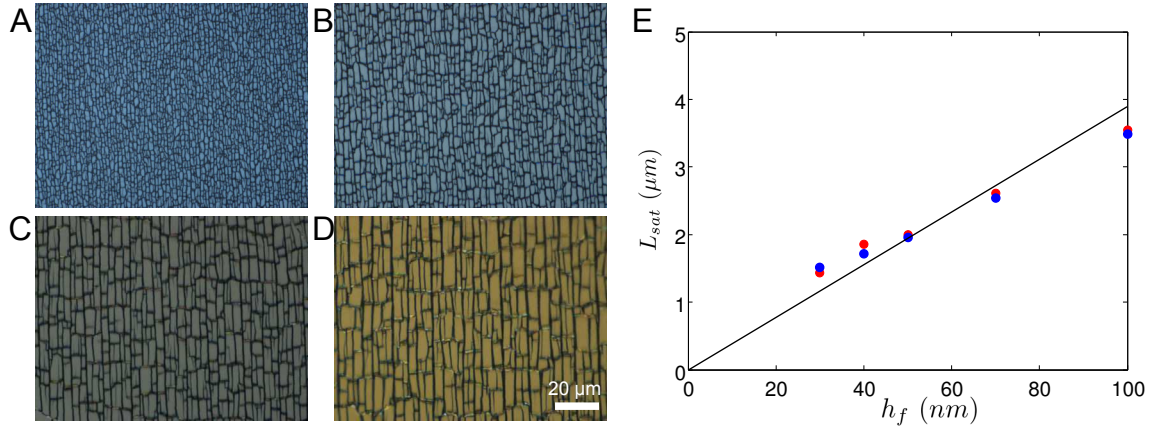


FIGURE 5.11: Après traction uniaxiale à 100 % et décharge, figure de fragmentation d'une monocouche d'oxyde de zinc d'épaisseur $h_f = 30$ nm (A), 50 nm (B), 70 nm (C) et 100 nm (D). (E) Longueur finale des fragments après un étirement uniaxial de 50 (en bleu) et 100% (en rouge) en fonction de l'épaisseur de la couche d'oxyde.

mation intermédiaire et un arrêt du processus de fragmentation à forte déformation. Si le premier régime de propagation statistique et la saturation ont déjà été décrits avec un certain succès dans la littérature de la fragmentation des films minces, le second régime est souvent ignoré. Pour prédire les conditions de propagation des fissures et décrire les distances d'interaction entre elles, nous allons d'abord présenter un modèle simple unidimensionnel pour tenir compte du transfert de contraintes entre la couche et le substrat. Nous nous intéresserons au cas d'un transfert parfaitement élastique proposé par Xia & Hutchinson (2000) et formalisé par Baldelli *et al.* (2013).

5.3 Monocouche fragile : un modèle pour un substrat élastique

Une description classique du phénomène de fragmentation d'une couche rigide déposée sur un substrat flexible est le modèle uni-dimensionnel du *shear lag*. Ce modèle a été développé par Cox (1952) pour l'étude de la distribution des contraintes de tension le long des fibres dans une structure composite puis a été appliqué aux films minces par Hu & Evans (1989). Dans ce modèle, nous considérons que l'épaisseur du substrat étant très supérieure à celle de la couche, le substrat se déforme uniformément et transmet la déformation macroscopique imposée par l'opérateur. Les fissures rompent la transmission des contraintes σ dans la couche. Cette transmission se fait donc par le substrat. Nous décrivons le transfert de contrainte entre le film et le substrat par une contrainte interfaciale de cisaillement $\tau(x)$. Un équilibre de force sur un

élément de surface de longueur dx et d'épaisseur h_f conduit à :

$$h_f \frac{d\sigma}{dx} = \bar{E}_f h_f \frac{d^2 u}{dx^2} = \tau(x) \quad (5.1)$$

où nous définissons $\bar{E}_f = E_f / (1 - \nu_f^2)$.

Nous considérons que σ est uniforme sur l'épaisseur de la couche. La forme de $\tau(x)$ permet de décrire le transfert de contrainte entre le film et le substrat. Nous considérons une pré-fissure dans un film mince et nous imposons une déformation ϵ au substrat. Nous cherchons à décrire à quelle déformation une fissure voisine peut se propager et à déterminer l'état de contrainte en $x = 0$ équidistant de deux fissures (d'abscisse $x = \pm L$).

La détermination du cisaillement τ est un problème complexe car il faut résoudre le problème entier. Nous choisissons ici de suivre une approche simple unidimensionnelle pour décrire le transfert de la contrainte entre la couche et le substrat.

5.3.1 Substrat élastique : approche de Xia et Hutchinson

Nous synthétisons dans cette section le modèle proposé par Xia & Hutchinson (2000).

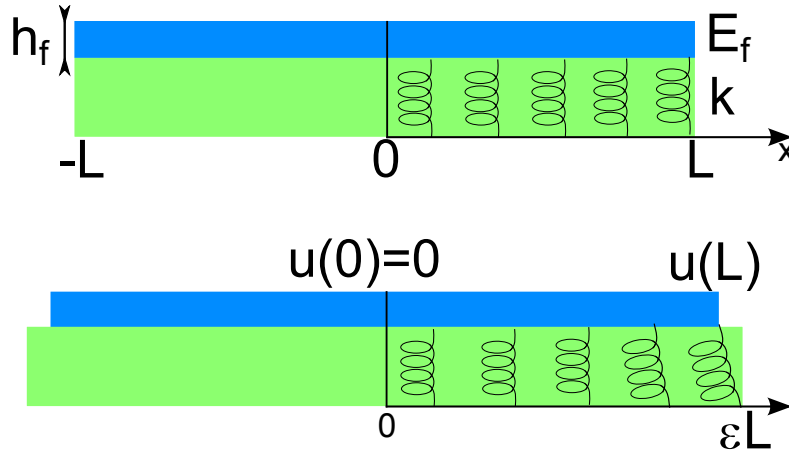


FIGURE 5.12: Modèle élastique (de raideur k) de transfert de contrainte entre le substrat et le film (d'épaisseur h_f et module de Young E_f). Lorsque le substrat est soumis à une déformation ϵ , le film subit un déplacement u .

Nous considérons une force élastique de rappel de raideur k exercée par le substrat sur le film pour tenir compte de la discordance entre le déplacement imposé par le substrat ϵx et le déplacement réel de la couche $u(x)$ (figure 5.12). Dans cette approche, la réponse du substrat est locale. Baldelli *et al.* (2013) ont montré que ce modèle était valide pour des systèmes à deux couches dont

l'une, siège du cisaillement, est responsable de la raideur k . Nous l'utilisons dans un cas plus général où la validité n'a pas été démontrée.

Nous avons donc :

$$\tau(x) = k(u - \epsilon x) \quad (5.2)$$

et il faut alors résoudre l'équation 5.1 :

$$\bar{E}_f h_f \frac{d^2 u}{dx^2} = k(u - \epsilon x) \quad (5.3)$$

avec les conditions aux limites adéquates (le déplacement est nul en $x = 0$ par symétrie et la contrainte σ est nulle sur les bords de la fissure) :

$$\begin{cases} u(0) = 0 \\ \frac{du}{dx}(x = \pm L) = 0 \end{cases}$$

Nous obtenons donc le déplacement du film et la contrainte dans le film en fonction de x :

$$\begin{aligned} u(x) &= \epsilon \left(x - \ell \frac{\sinh(x/\ell)}{\cosh(L/\ell)} \right) \\ \sigma(x) &= \bar{E}_f \epsilon \left(1 - \frac{\cosh(x/\ell)}{\cosh(L/\ell)} \right) \end{aligned}$$

où nous avons introduit la longueur élastique $\ell = \sqrt{\bar{E}_f h_f / k}$ qui caractérise dans ces solutions la décroissance exponentielle de la déformation dans la direction transverse de la fissure. Cette longueur élastique ne dépend pas du chargement appliqué. Elle définit la taille de la zone de décharge de la fissure.

Traçons la contrainte dans le film prédite pour un réseau de fissures espacées d'une distance $2L$ (figure 5.13). Si la longueur du fragment est grande devant la longueur de déchargement élastique ($L \gtrsim 5\ell$), les deux fissures interagissent peu car elles sont séparées par un plateau de contrainte constant égal à 1. La contrainte σ est uniforme sur presque toute la longueur du fragment et la propagation de nouvelles fissures est alors pilotée par la distribution de défauts (Régime 1 de propagation de fissures isolées). Diminuons la longueur du fragment ($L \lesssim 5\ell$). Les deux fissures interagissent (Régime 2) et la contrainte maximale atteinte est inférieure à la contrainte maximale sans interaction. Le maximum de la contrainte au centre du fragment (en $x = 0$) est d'autant plus marqué que le rapport L/ℓ est faible. Les fissures se propagent préférentiellement au centre du fragment précédent.

En suivant Xia & Hutchinson (2000), nous pouvons identifier ℓ (et k) en comparant le taux de restitution d'énergie élastique au calcul de Beuth (1992) dans le cas d'une fissure isolée ($L = \infty$) :

$$\ell = \sqrt{\frac{\bar{E}_f h_f}{k}} = \frac{\pi}{2} g(D_1, D_2) h_f = \gamma(1 - \nu^2) h_f \quad (5.4)$$

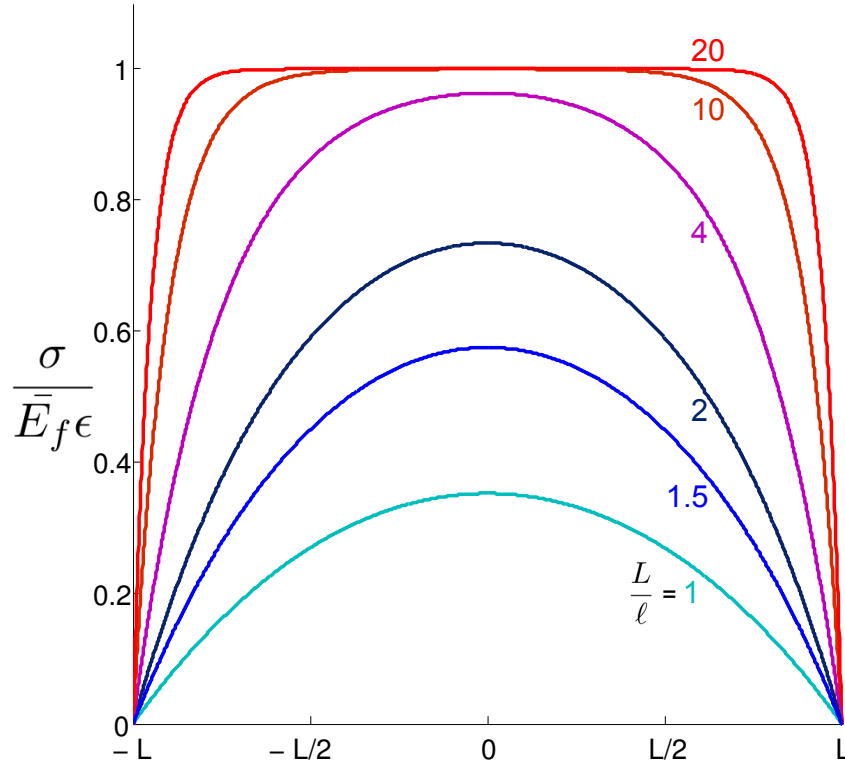


FIGURE 5.13: Contrainte dans le film normalisée $\sigma/\bar{E}_f\epsilon$ prédite pour un réseau de fissures espacées d'une distance $2L$ pour différents rapports L/ℓ .

Si les modules de Young de la couche et du substrat sont égaux ($D_1 = 0$), la longueur caractéristique élastique est de l'ordre de l'épaisseur de la couche ($\ell = 1.98h_f$). Au contraire, dans notre cas expérimental, le déchargement élastique dans le substrat autour de la fissure est important en raison du grand désaccord de module entre la couche et le substrat. La taille élastique est donc grande devant l'épaisseur : nous l'estimons en loi d'échelle à $\ell \sim h_f E_f / E_s \sim 115 h_f$.

5.3.2 Calcul du taux de restitution d'énergie

Sous quelles conditions une nouvelle fissure peut-elle se propager dans la couche ? Il faut comparer l'énergie élastique dans l'état cassé à l'énergie dans l'état intact. Nous supposons que la propagation a lieu au milieu du segment précédent.

Énergie élastique dans l'état cassé

Calculons l'énergie élastique dans l'état cassé. Il s'agit de la somme de l'énergie contenue dans le film et de l'énergie du substrat. Notons $B = \bar{E}_f h_f =$

$\ell^2 k$ et calculons l'énergie élastique stockée dans le film entre O et L :

$$\begin{aligned}\mathcal{E}_{film} &= \int_0^L \frac{B}{2} \left(\frac{du}{dx} \right)^2 dx = \int_0^L \frac{B\epsilon^2}{2} \left(1 - \frac{\cosh(x/\ell)}{\cosh(L/\ell)} \right)^2 dx \\ &= \frac{B\epsilon^2}{2 \cosh^2(L/\ell)} \int_0^L \left(\cosh^2(L/\ell) - 2 \cosh(L/\ell) \cosh(x/\ell) + \cosh^2(x/\ell) \right) dx\end{aligned}$$

Notons que $\cosh^2(u) = (\cosh(2u) + 1)/2$ et $2 \sinh(u) \cosh(u) = \sinh(2u)$, nous obtenons donc :

$$\begin{aligned}\mathcal{E}_{film} &= \frac{B\epsilon^2}{2 \cosh^2(L/\ell)} \left[\cosh^2(L/\ell)x - 2\ell \cosh(L/\ell) \sinh(x/\ell) + \frac{\ell}{4} \sinh(2x/\ell) + \frac{x}{2} \right]_0^L \\ &= \frac{B\epsilon^2}{2} \left(L - 2\ell \tanh\left(\frac{L}{\ell}\right) + \frac{\ell}{2} \tanh\left(\frac{L}{\ell}\right) + \frac{L}{2 \cosh^2(L/\ell)} \right)\end{aligned}$$

Calculons l'énergie élastique contenue dans le substrat entre 0 et L après la propagation :

$$\begin{aligned}\mathcal{E}_{substrat} &= \int_0^L \frac{k}{2} (u - \epsilon x)^2 dx = \frac{k}{2} \int_0^L \frac{\epsilon^2 \ell^2}{\cosh^2(L/\ell)} \sinh^2(x/\ell) dx \\ &= \frac{B\epsilon^2}{2 \cosh^2(L/\ell)} \int_0^L \frac{\cosh(2L/\ell) - 1}{2} dx \\ &= \frac{B\epsilon^2}{2} \left(\frac{\ell}{2} \tanh\left(\frac{L}{\ell}\right) - \frac{L}{2 \cosh^2(L/\ell)} \right)\end{aligned}$$

Sommons les deux contributions, nous obtenons l'énergie élastique du système après propagation :

$$\mathcal{E}_2 = \frac{B\epsilon^2}{2} L \left(1 - \frac{\ell}{L} \tanh\left(\frac{L}{\ell}\right) \right) \quad (5.5)$$

Variation de l'énergie élastique lors de la propagation

L'énergie relâchée est donc la différence entre cet état \mathcal{E}_2 et l'état sans fissures $\mathcal{E}_1 = B\epsilon^2 L/2$:

$$\Delta\mathcal{E} = \mathcal{E}_2 - \mathcal{E}_1 = -\frac{B\epsilon^2 \ell}{2} \tanh\left(\frac{L}{\ell}\right) = G_c h_f \quad (5.6)$$

Adimensionalisons les distances par ℓ et le taux de restitution d'énergie par $\bar{E}_f \epsilon^2 \ell/2$, nous obtenons le taux de restitution d'énergie normalisé :

$$\tilde{G} = -\tanh(\tilde{L}) \quad (5.7)$$

Renormalisation

Nous nous attendons donc à une dépendance expérimentale de la longueur entre les fissures proportionnelle à ℓ et à une dépendance de la déformation imposée proportionnelle à $\sqrt{\frac{2G_c}{E_f \ell}}$.

Renormalisons la déformation expérimentale ϵ par $\sqrt{\frac{G_c}{E_f \ell}}$ et les longueurs entre fissures H mesurées de la figure 5.6 par la longueur élastique ℓ (figure 5.14). Les courbes obtenues pour différentes épaisseurs se superposent sur toute la gamme de déformation considérée, ce qui confirme que les ingrédients de notre description sont raisonnables pour décrire la propagation.

5.3.3 Propagation simultanée ou séquentielle

Considérons un réseau de fissures. Pour une déformation imposée ϵ et une énergie de fissure du film G_c , nous allons déterminer quelle distance entre les fissures est possible si la propagation des fissures est simultanée. Nous considérerons ensuite le cas plus réaliste d'une propagation séquentielle en reprenant le raisonnement de Xia & Hutchinson (2000).

Propagation simultanée

Considérons un réseau périodique de fissures semi-infinies séparées d'un pas constant H . Notons que pour des raisons de symétrie, la pointe de chaque fissure est en mode I et que la propagation est donc droite. Le taux de restitution d'énergie élastique est simplement (en notant que $H = 2L$) :

$$G = \frac{\bar{E}_f \epsilon^2 \ell}{2} \tanh\left(\frac{H}{2\ell}\right) \quad (5.8)$$

Pour une déformation ϵ donnée, la taille entre les fissures H s'écrit alors :

$$\frac{H}{2\ell} = \operatorname{arctanh}\left(\frac{2G_c}{\bar{E}_f \epsilon^2 \ell}\right) \quad (5.9)$$

Les distances d'interaction prédites (courbe jaune de la figure 5.14 avec $\ell = 115 h_f$) sont significativement inférieures aux distances observées. En effet, ce modèle ne tient pas compte de l'irréversibilité de la propagation. Il n'aurait un sens que si toutes les fissures se propageaient simultanément à la déformation critique en choisissant une distance d'interaction optimale H . À cause de la distribution de défauts dans la couche, ceci n'est pas observé expérimentalement. Une amélioration de ce modèle naïf est de considérer que la propagation des fissures a lieu séquentiellement. Il faut alors déterminer si la propagation d'une fissure au centre du fragment précédent de taille H est énergétiquement possible.

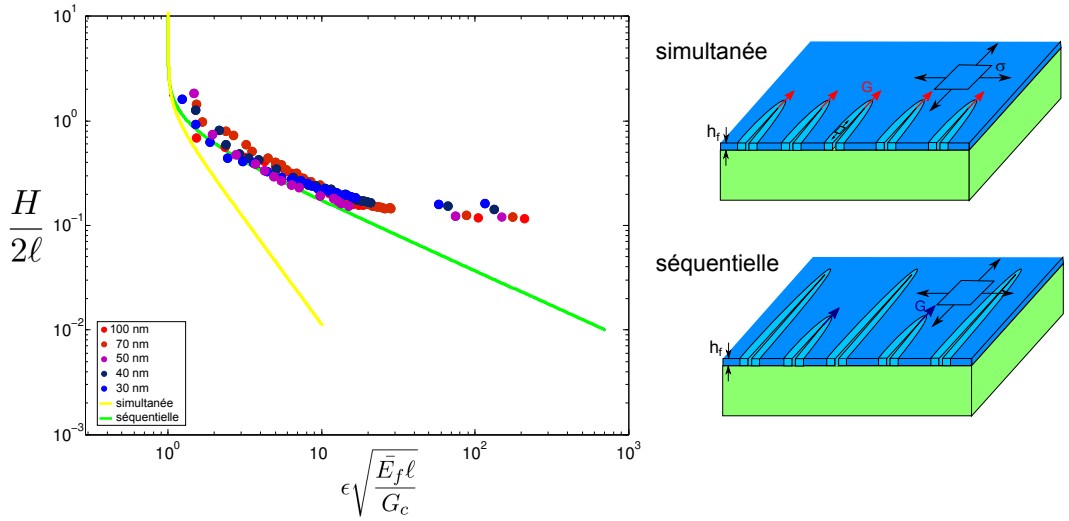


FIGURE 5.14: Demi-longueur des fragments $H/2$ normalisée par la taille de décharge élastique $\ell = 115h_f$ en fonction de la déformation normalisée $\epsilon\sqrt{\bar{E}_f\ell}/G_c$. En trait plein jaune, la distance minimale des fragments dans le cas d'une formation simultanée. En trait plein vert, la distance minimale des fragments dans le cas d'une formation séquentielle. Nous observons que la description est défaillante à grande déformation car elle ne considère pas la localisation dans le substrat.

Propagation séquentielle

Considérons le même réseau de fissures semi-périodiques de pas $2H$. La propagation de nouvelles fissures est-elle possible entre les fissures anciennes ? Ceci aboutirait-il à un nouveau réseau de pas H ? Le taux de restitution d'énergie est obtenu simplement en comparant l'énergie loin de la tête de fissure devant et derrière la propagation des nouvelles fissures :

$$G = \frac{\bar{E}_f\epsilon^2\ell}{2} \left(2 \tanh\left(\frac{H}{2\ell}\right) - \tanh\left(\frac{H}{\ell}\right) \right) \quad (5.10)$$

Le taux de restitution d'énergie est donc significativement inférieur pour une propagation séquentielle par rapport à une propagation simultanée. Ce résultat a été obtenu par Xia & Hutchinson (2000). Comparons la prédiction de ce modèle à nos données expérimentales (figure 5.14). La tendance est mieux décrite par le modèle séquentiel que par le modèle de propagation simultanée. La description reste défaillante à grande déformation, car nous ne considérons pas la localisation de la déformation dans le substrat dû au comportement plastique du polymère.

5.3.4 Conclusion

Un modèle simple considérant une force élastique de rappel pour tenir compte de la complaisance du substrat permet de modéliser la contrainte dans le film rigide. Le calcul du taux de restitution d'énergie permet de prédire la densité de fissures lors de la fragmentation. Nous allons proposer une extension du modèle pour tenir compte de la localisation dans le substrat plastique dans la section suivante.

5.4 Monocouche fragile : un modèle pour un substrat élasto-plastique

Nous avons vu que le substrat présentait des propriétés élasto-plastiques au-delà d'une déformation $\epsilon_p = 2.1\%$. Nous essayons ici d'estimer les conséquences de ce changement de propriétés sur la fragmentation de la couche.

5.4.1 Extension de l'approche de Xia et Hutchinson

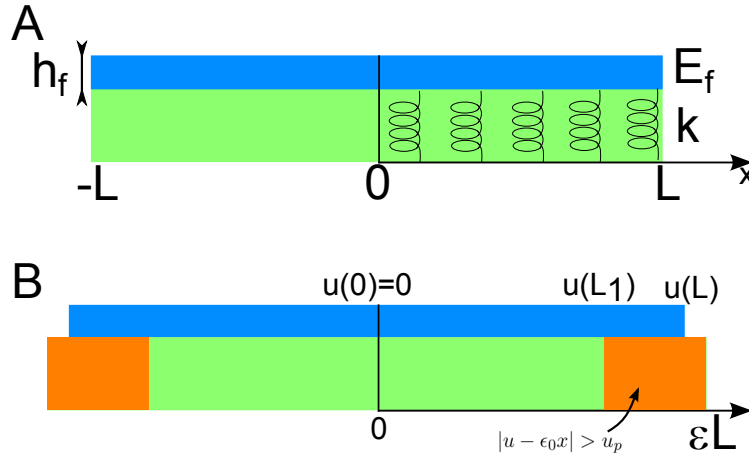


FIGURE 5.15: (A) Modèle élasto-plastique (de raideur k , contrainte plastique σ_y) de transfert de contrainte entre le substrat et le film (d'épaisseur h_f et module de Young E_f). (B) Le substrat se déforme élastiquement entre 0 et L_1 (où $\epsilon = \epsilon_p$), plastiquement entre L_1 et L .

Une extension naturelle du modèle élastique par un substrat élasto-plastique permet de tenir compte des deux comportements du substrat qui sont obtenus pour une valeur critique de déplacement u_p . L'équation 5.1 devient :

$$\bar{E}_f h_f \frac{d^2 u}{dx^2} = \tau(x) = \begin{cases} k(u - \epsilon x), & |u - \epsilon x| < u_p \\ -k u_p, & |u - \epsilon x| > u_p \end{cases} \quad (5.11)$$

Ces deux comportements nous conduisent à déterminer une taille L_1 sur laquelle le substrat est déformé plastiquement. Nous déterminerons ensuite la contribution de l'énergie relâchée plastiquement et élastiquement dans le substrat et l'énergie relâchée dans la couche après propagation afin de déterminer le taux de restitution d'énergie lors de la propagation.

Raccordement en L_1

Dans la zone élastique (pour $x \in [0 : L_1]$), le déplacement s'écrit comme précédemment, $u = \epsilon(x + A \sinh(x/\ell))$, où A est une constante que nous déterminons en imposant la continuité des déplacements en $x = L_1$. Intégrons l'équation 5.11 dans la zone plastique (pour $x \in [L_1 : L]$), en tenant compte du fait que la contrainte σ s'annule en $x = L$:

$$\frac{du}{dx} = -\frac{u_p}{\ell^2}(x - L)$$

En imposant que $u(L_1) - \epsilon L_1 = -u_p$, nous obtenons les déplacements :

$$u(x) = \frac{u_p}{2\ell^2}[(L - L_1)^2 - (x - L)^2] + \epsilon L_1 - u_p$$

Raccordons les déplacements en $L = L_1$:

$$\epsilon L_1 - u_p = \epsilon L_1 + \epsilon A \sinh(L_1/\ell)$$

ce qui permet de déterminer A :

$$A = -\frac{u_p}{\epsilon \sinh(L_1/\ell)}$$

Raccordons les contraintes en $L = L_1$ afin de déterminer L_1 :

$$\epsilon - \frac{u_p}{\ell} \frac{\cosh(L_1/\ell)}{\sinh(L_1/\ell)} = \frac{u_p}{\ell^2}(L - L_1)$$

ce qui conduit à :

$$\frac{\epsilon}{\epsilon_p} + \frac{L_1 - L}{\ell} = \coth\left(\frac{L_1}{\ell}\right) \quad (5.12)$$

où ϵ_p est défini par $\epsilon_p = u_p/\ell$.

5.4.2 Calcul du taux de restitution d'énergie élastique.

Calculons enfin la somme de l'énergie élastique et de l'énergie dissipée plastiquement dans le substrat : \mathcal{E}_e dans la partie où le substrat est élastique et \mathcal{E}_p dans la partie où le substrat est plastique.

Énergie dans la partie élastique

Dans la partie substrat élastique (entre 0 et L_1), nous obtenons :

$$\begin{aligned}\mathcal{E}_e &= \int_0^{L_1} \frac{B}{2} \left(\frac{du}{dx} \right)^2 + \frac{k}{2} (u - \epsilon x)^2 dx \\ \mathcal{E}_e &= \frac{B}{2} \int_0^{L_1} \left(\left(\epsilon - \frac{u_p}{\ell} \frac{\cosh(x/\ell)}{\sinh(L_1/\ell)} \right)^2 + \frac{u_p^2}{\ell^2} \frac{\sinh^2(x/\ell)}{\sinh^2(L_1/\ell)} \right) dx \\ \mathcal{E}_e &= \frac{B}{2 \sinh^2(L_1/\ell)} \left[\epsilon^2 \sinh^2(L_1/\ell) x - 2\epsilon u_p \sinh(L_1/\ell) \sinh(x/\ell) + \frac{u_p^2}{2\ell} \sinh(2x/\ell) \right]_0^{L_1} \\ \mathcal{E}_e &= \frac{B}{2} \left(\epsilon^2 L_1 - 2\epsilon u_p + \frac{u_p^2}{2\ell} \coth\left(\frac{L_1}{\ell}\right) \right)\end{aligned}$$

Énergie élastique et dissipée plastiquement

dans la partie substrat plastique (entre L_1 et L), on obtient :

$$\begin{aligned}\mathcal{E}_p &= \int_{L_1}^L \frac{B}{2} \left(\frac{du}{dx} \right)^2 + \frac{k}{2} u_p^2 - k u_p (u + u_p) dx \\ \mathcal{E}_p &= \frac{B u_p}{\ell^2} (L - L_1) \left[-\frac{u_p}{3\ell^2} (L - L_1)^2 + \frac{\epsilon(L - L_1)}{2} + u_p \right]\end{aligned}$$

Variation d'énergie lors de la propagation

L'énergie disponible pour la propagation de la fissure est donc :

$$\frac{B}{2} \epsilon^2 L - (\mathcal{E}_e + \mathcal{E}_p) = G h_f$$

Adimensionalisons les distances par ℓ , l'énergie par $\bar{E}_f \epsilon^2 \ell / 2$, les déformations par ϵ_p , nous obtenons un taux de restitution d'énergie normalisé :

$$\frac{G h_f}{B \epsilon^2 \ell / 2} = \tilde{G} h_f = \frac{1}{\tilde{\epsilon}} + (\tilde{L} - \tilde{L}_1) - \frac{1}{\tilde{\epsilon}} (\tilde{L} - \tilde{L}_1)^2 + \frac{1}{3\tilde{\epsilon}^2} (\tilde{L} - \tilde{L}_1)^3 \quad (5.13)$$

en utilisant l'équation 5.12 :

$$\tilde{\epsilon} + \tilde{L}_1 - \tilde{L} = \coth \left(\tilde{L}_1 \right) \quad (5.14)$$

5.4.3 Limite élastique et parfaitement plastique

Testons notre modèle en comparant ses limites avec le modèle élastique et le modèle parfaitement plastique du 'shear lag'.

Limite élastique

L'équation 5.13 permet de retrouver la limite élastique de l'équation 5.7 en imposant une zone plastique nulle ($\tilde{L} = \tilde{L}_1$) c'est à dire pour $\tilde{\epsilon} = \cotanh(\tilde{L}_1) = \cotanh(\tilde{L})$. Dans ce cas, nous retrouvons bien :

$$Gh_f = B\epsilon^2 \frac{\ell}{2} \frac{1}{\tilde{\epsilon}} = B\epsilon^2 \frac{\ell}{2} \tanh\left(\frac{L}{\ell}\right)$$

Limite parfaitement plastique du 'shear lag'

Un modèle largement utilisé dans la littérature considère une déformation plastique parfaite du substrat (modèle parfaitement plastique du 'shear lag'). Le transfert des contraintes entre la couche et le substrat est alors décrite par la fonction $\tau(x) = \tau_p$ constante que nous pouvons assimiler à la contrainte de cisaillement plastique du substrat (Suo (2003)). L'intégration de l'équation 5.1 conduit alors à une longueur L_p de déchargement :

$$L_p = \frac{B\epsilon}{\tau_p} \quad (5.15)$$

Cette longueur augmente avec le chargement appliqué. Le modèle suppose que les zones plastiques ne peuvent s'interpénétrer, ce qui conduit à la sélection d'une distance minimale entre fissures $2B_c\epsilon_c/\tau_p$ où ϵ_c est la déformation à la rupture (Leterrier *et al.* (1997b)). Examinons la compatibilité de cette longueur de déchargement et du taux de restitution d'énergie correspondant dans la limite parfaitement plastique de notre modèle élasto-plastique.

Dans cette limite, nous considérons que la raideur élastique est infinie ($k \rightarrow \infty$) et que τ_p est constante. Nous obtenons donc que $u_p = \tau_p/k \rightarrow 0$, $\ell = \sqrt{B/k} \rightarrow 0$ et $\epsilon_p = \tau_p/\sqrt{Bk} \rightarrow 0$. D'après l'équation 5.14, nous obtenons la longueur de la zone plastique $L - L_1 = B\epsilon/\tau_p$ égale à la longueur L_p de déchargement prédite par le modèle parfaitement plastique du 'shear lag'. Vérifions maintenant que le taux de restitution d'énergie obtenu par notre modèle dans cette limite est conforme à celui prédit par le 'shear lag'. D'après l'équation 5.13, nous avons :

$$Gh_f = \frac{B\epsilon^2}{2} \left(\frac{\ell\epsilon_p}{\epsilon} + \frac{\epsilon B}{\tau_p} - \frac{\epsilon_p \ell}{\epsilon} \left(\frac{B\epsilon}{\tau_p \ell} \right)^2 + \frac{\epsilon_p^2 \ell}{3\epsilon^2} \left(\frac{B\epsilon}{\tau_p \ell} \right)^3 \right)$$

Avec $\ell\epsilon_p = 1/k$ et $\epsilon_p/\ell = \tau_p/B$, le premier terme s'annule pour $k \rightarrow \infty$ et nous obtenons finalement :

$$Gh_f = \frac{1}{6} \frac{B^2 \epsilon^3}{\tau_p}$$

Retrouvons directement ce résultat en considérant le modèle parfaitement plastique du 'shear lag'. Dans l'état fissuré, l'énergie élastique a diminué par

rapport à l'état non fissuré, mais une partie \mathcal{E}_p de l'énergie élastique relâchée a été consommée dans les processus plastique. Le taux de restitution de l'énergie pour la propagation de fissure est donc $Gh_f = \mathcal{E}_{el} - \mathcal{E}_p$.

Écrivons tout d'abord la variation d'énergie élastique :

$$\mathcal{E}_{el} = \frac{B}{2}\epsilon^2 H - \int_0^H \frac{\sigma^2}{2E} h_f dx = \frac{B\epsilon^2}{2} \left(1 - \frac{1}{3}\right)$$

avec $\sigma(x) = E\epsilon x/L_p$.

L'énergie dissipée plastiquement s'écrit :

$$\mathcal{E}_p = \int_0^H \tau_p u(x) dx = \frac{\tau_p \epsilon}{2H} \int_0^H x^3 dx = \frac{1}{6} B\epsilon^2 H$$

avec $u(x) = \epsilon x^2/2L_p$.

En retranchant cette dissipation plastique à la contribution élastique \mathcal{E}_{el} , nous obtenons un taux de restitution d'énergie :

$$Gh_f = \frac{1}{6} \frac{B^2 \epsilon^3}{\tau_p}$$

conforme aux prédictions de notre modèle.

Conclusion

Le modèle élasto-plastique permet donc de passer continument du régime élastique (décrit par Xia & Hutchinson (2000)) au régime parfaitement plastique du 'shear lag'.

5.4.4 Prédiction et paramètres du modèle

Nous pouvons maintenant prédire l'évolution de la densité de fissures en fonction du chargement. Pour une déformation ϵ , nous cherchons la longueur L qui peut apparaître par fissuration d'un motif de fragment de taille $2L$ (correspondant à une apparition séquentielle) telle que $G(2L, \epsilon) - 2G(L, \epsilon) = G_c$ en utilisant l'expression de $G(L, \epsilon)$ obtenue dans les équations 5.13 et 5.14. Traçons la demi-longueur entre fissures $L = H/2$ adimensionnée par la longueur de déchargement élastique $\ell = B/k$ en fonction de la déformation adimensionnée par la déformation plastique ϵ_p (figure 5.16). Nous adimensionnons finalement G_c par $\bar{E}_f \epsilon_p^2 \ell/2$. Nous observons différents comportements en fonction de l'énergie de fissure \widetilde{G}_c considérée.

Pour un faible $\widetilde{G}_c = 0.1$, la déformation critique permettant la propagation des fissures est inférieure à la déformation plastique. Pour des faibles déformations, le modèle prédit une propagation selon la ligne verte tant que la rupture se déroule dans le régime élastique. Celle-ci coïncide avec la théorie élastique décrite par l'équation 5.10 (tracée en bleu). Dès que le déplacement u excède

u_p , la solution prédite diffère de la solution parfaitement élastique (courbe noir continu). Nous pouvons prédire la limite de la zone plastique (courbe en ligne pointillée rouge) qui est définie par $L = L_1$ dans l'équation 5.14. Nous mesurons alors la taille de la zone plastique ($L - L_1$). Tant que celle-ci augmente ou reste constante pour ϵ croissant, la solution est acceptable. Nous observons cependant que au-delà d'une déformation $\epsilon = \epsilon^*$, la taille de la zone plastique diminue lorsque ϵ croît. Nous nommons cette taille $L_{p,max}$. Les solutions obtenues par le modèle pour les déformations supérieures (pour lesquelles la zone plastique diminue) sont tracées en pointillés noirs et n'ont pas de sens physique.

Augmentons \widetilde{G}_c . La déformation critique permettant la propagation d'une fissure devient supérieure à la déformation plastique. Les premières fissures apparaissent avec une taille de zone plastique non nulle pour des déformations inférieures à la courbe élastique obtenue avec le même \widetilde{G}_c (visible par exemple pour $\widetilde{G}_c = 10$ dans la figure 5.16). Nous observons que nous atteignons très rapidement ϵ^* pour lequel la taille de la zone plastique diminue. Nous considérons différents scénarios pour décrire la fragmentation au-delà de ϵ^* .

Après la diminution de la zone plastique

À partir de ce point, les solutions $G = G_c$ font intervenir une diminution de la zone plastique ($L - L_1$). Ces solutions ne sont pas acceptables. Nous proposons plusieurs possibilités pour interpréter ce phénomène dans notre modèle et aller au-delà :

- nous pouvons imaginer qu'il n'existe donc plus de solutions avec des fragments plus petits, comme dans le cas du shear-lag où nous imposons à la main que les zones plastiques ne peuvent s'interpénétrer. Dans ce scénario, la fissuration s'arrête en ce point.
- nous pouvons autoriser un déchargement des zones plastiques. Est-ce raisonnable ? Il faudrait tenir compte du déplacement irréversible et les équations de notre modèle ne s'appliquent plus.
- nous avons supposé des fragments tous identiques. Il est possible que des solutions existent en levant cette hypothèse. La complexité du modèle augmenterait grandement.
- une dernière possibilité est de rechercher des solutions compatibles pour lesquelles la zone plastique augmente en acceptant que $G > G_c$. De telles solutions existent bien et nous les traçons en rouge dans la figure 5.16. Elles conduisent alors à une saturation de la taille des fragments pour $\epsilon \rightarrow \infty$ et la taille de saturation converge vers $L_{p,max}$ (dont la valeur est tracée en mauve dans la figure 5.16).

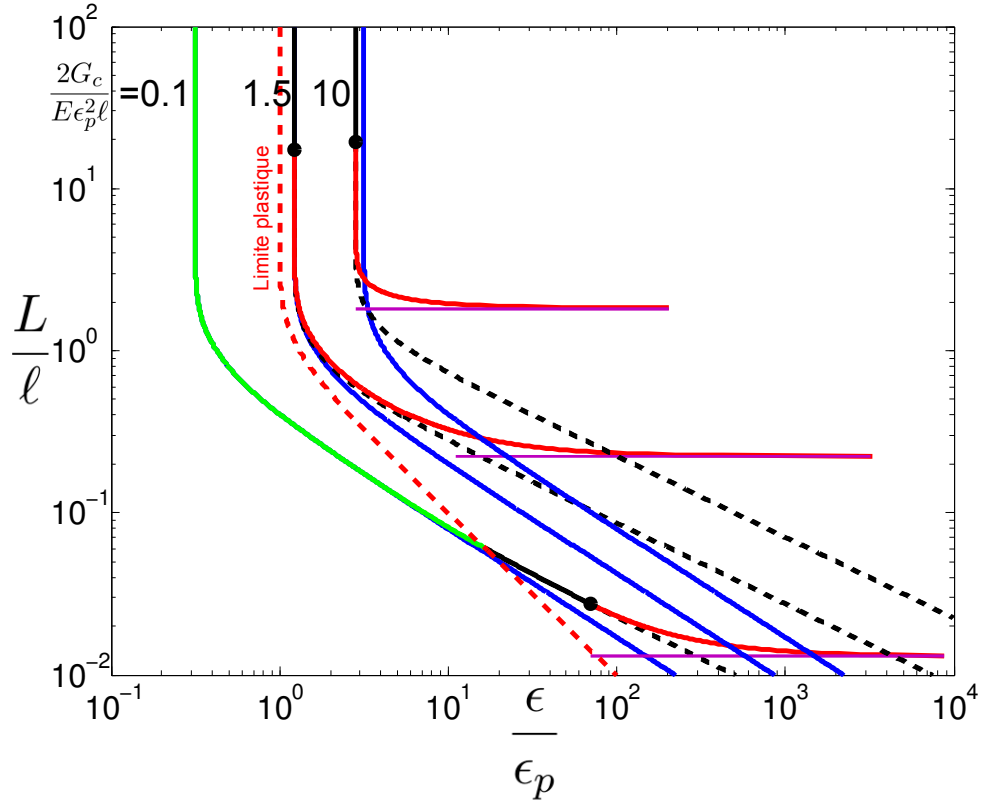


FIGURE 5.16: Prédiction de la demi-longueur entre fissures L en fonction de la déformation ϵ pour différentes valeurs de l'énergie de fracture G_c .

5.4.5 Comparaison expérimentale

Afin de comparer plus aisément le modèle avec les expériences, nous adimensionalisons la déformation imposée par $\epsilon/\sqrt{G_c/\bar{E}_f\ell}$ comme dans la figure 5.14. Dans le régime plastique, une telle adimensionalisation conduit à différentes courbes pour différentes épaisseurs de la monocouche (ligne continue à grande déformation de la figure 5.17). En considérant une contrainte de cisaillement plastique constante $\tau = 15$ MPa (ce qui est un ordre de grandeur raisonnable, voir la figure 5.4), nous obtenons un bon accord entre la fragmentation des monocouches et la prédiction du modèle élasto-plastique. La fragmentation est d'abord bien décrite par le modèle élastique séquentiel mais pour des déformations plus importantes, le modèle élasto-plastique conduit à une saturation de la longueur des fragments qui est effectivement observée expérimentalement. Nous avons ici choisi d'utiliser, comme au paragraphe précédent, les solutions telles que la zone plastique augmente en acceptant que $G > G_c$. Ce critère décrit raisonnablement la saturation pour les films de 30, 40 et 50 nm d'épaisseur. La saturation n'est cependant pas bien décrite pour

les épaisseurs de film plus importants ($h_f = 70$ et 100 nm en brun et rouge). La déviation de la linéarité entre la distance des fragments à saturation et l'épaisseur de la couche que nous avons noté dans la figure 5.11 est moins marquée expérimentalement que dans le modèle.

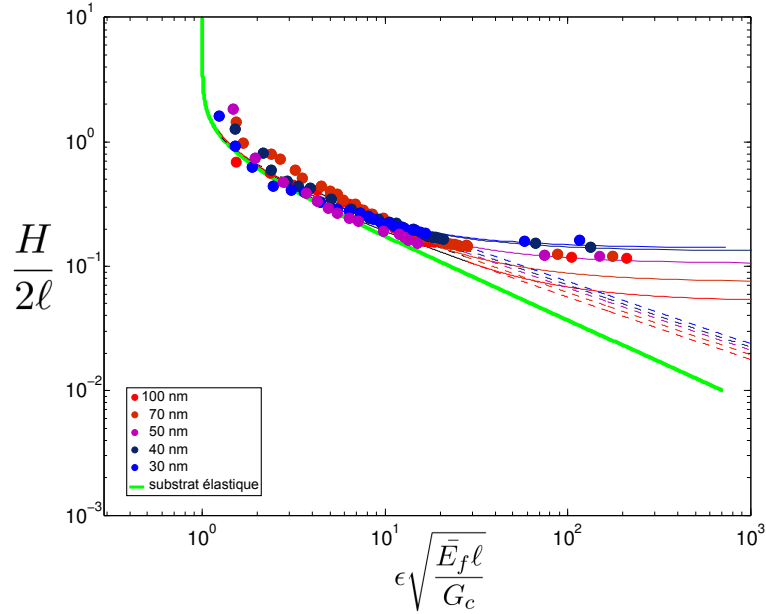


FIGURE 5.17: Demi-longueur des fragments $H/2$ normalisée par la taille de décharge élastique $\ell = 115h_f$ en fonction de la déformation normalisée $\epsilon\sqrt{\bar{E}_f\ell}/G_c$. En trait plein vert, nous traçons la distance minimale des fragments prédite dans la limite d'un substrat parfaitement plastique (équation 5.10). Différentes épaisseurs de la couche conduisent à des saturations différentes à grande déformation représentées par les lignes continues. Les lignes pointillées représentent le modèle élasto-plastique sans contrainte sur l'évolution de la taille de la zone plastique.

5.4.6 Correction de la loi de comportement et de la taille élastique

Nous avons proposé des éléments pour améliorer le modèle de fissuration sur substrat élastique, en prenant en compte la possibilité de plasticité du substrat. Cependant ce modèle pourrait être amélioré en décrivant plus exactement la loi de comportement du polymère à grande déformation. Pour aller plus loin que notre description en loi d'échelle de la longueur de déchargement élastique ℓ , nous pouvons la calculer numériquement en tenant compte du rapport des modules de Young de la couche et du substrat.

Correction du comportement du polymère à grande déformation

Une hypothèse forte dans ce modèle est celle d'un comportement plastique parfait. Nous pouvons en effet voir que le substrat est en réalité assez loin d'avoir un comportement plastique idéal. Pour les grandes déformations, il faut tenir compte de la déformation des dimensions de l'éprouvette pendant l'essai (figure 5.18B). Nous traçons alors la contrainte vraie ($\sigma_x = \sigma_n(1 + \epsilon_n)$) en fonction de la déformation vraie ($\epsilon_x = \ln(1 + \epsilon_n)$) prenant en compte le cumul des allongements en considérant une déformation isochore (ce qui est raisonnable dans le domaine plastique) et une déformation homogène (effectivement observée expérimentalement). Ces résultats sont en accord quantitatif avec des études antérieures de caractérisation thermique et mécanique de films d'ETFE (De Focatiis & Gubler (2013)). L'approximation de modèle parfaitement plastique est donc très approchée et en réalité la contrainte augmente pour les grandes déformations.

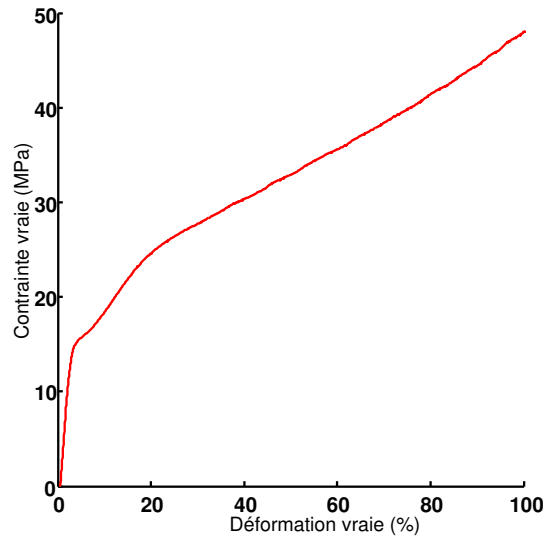


FIGURE 5.18: Contrainte vraie équivalente en fonction de la déformation vraie en supposant une déformation homogène.

Effet du rapport des modules et épaisseur finie en numérique

Plusieurs études numériques décrivent la taille de déchargement élastique. Beuth (1992) a calculé le taux de restitution d'énergie en fonction du rapport des modules caractérisés par le premier coefficient de Dundur D_1 (voir la section 2.4.1). Cependant, le comportement lorsque D_1 tend vers 1 (substrat très complaisant) n'est pas bien décrit. Dans ce cas, le taux de restitution est très dépendant du rapport des modules et la grande zone de déchargement

nécessite de considérer des épaisseurs de substrat importantes pour s'affranchir des effets de taille finie du substrat (ou d'éventuels problèmes de flexion de l'ensemble du système). Une meilleure compréhension de cette taille par une étude numérique est l'objet d'une collaboration naissante avec les équipes de Guillaume Parry et Raphael Estevez au SIMAP de Grenoble.

Les effets de l'épaisseur finie du substrat ont été caractérisés par Vlassak (2003) qui a calculé $\gamma(D_1, D_2, h_s/h_f)$. Dans les résultats expérimentaux que nous avons considérés, le rapport d'épaisseur très important entre la couche et le substrat ($h_s/h_f = 1250$) nous permettent d'ignorer les difficultés engendrées par la taille finie du substrat.

5.4.7 Conclusion

Nous proposons une extension du modèle de fissuration sur substrat élastique à un comportement élasto-plastique. La plasticité apparaît au-delà d'un seuil de déformation imposé, ou dès les premières fissures, selon la valeur du paramètre $G_c/\bar{E}_f \epsilon_p^2 \ell$ (ou de façon équivalente $G_c B^2/\bar{E}_f \tau^2 \ell^3$). Elle est localisée initialement près des fissures, mais envahit progressivement tout l'échantillon, lorsque le chargement augmente, et l'on retrouve le scénario de saturation des modèles de 'shear-lag'. Cette description permet de passer continument du modèle élastique présenté dans la section précédente au régime plastique (modèle du 'shear-lag') et de prédire ainsi la saturation de la fragmentation observée expérimentalement à grande déformation. Nous nous intéressons maintenant à la vitesse de propagation des fissures à faible déformation (dans le régime élastique).

5.5 Vitesse de propagation des fissures.

Dans le premier régime de propagation de fissures isolées, nous observons que la vitesse des fissures est aisément mesurable pour les premières fissures qui se propagent à faible chargement tandis que la vitesse des fissures se propageant à plus grande déformation est très grande. Il y a deux seuils indépendants : un seuil de propagation en régime permanent que nous avons déjà caractérisé et un seuil de nucléation qui dépend de la taille du défaut. Dans l'hypothèse où les fissures sont isolées, les plus gros défauts se propagent pour des déformations proches de la déformation critique de propagation en régime permanent et la propagation est quasi-statique. Les plus petits défauts qui se propagent pour des déformations plus importantes ont beaucoup d'énergie disponible pour se propager : leur vitesse est grande et la fissure peut se propager dynamiquement. Il est potentiellement possible de se propager à proximité d'une fissure précédente et non à la position maximisant le taux de restitution d'énergie élastique.

Plaçons-nous juste au-dessus du seuil de propagation des fissures. Nous pouvons mesurer la vitesse de propagation d'une fissure isolée à chargement

fixé. La vitesse dépend du rapport entre le taux de restitution d'énergie G et l'énergie de rupture de la couche G_c . Si nous considérons uniquement le taux de restitution d'une fissure isolée G_∞ , nous décrivons très mal la propagation des fissures (Insert de la figure 5.19). Lorsque la fissure se propage à proximité d'une fissure pré-existante, l'énergie relâchée lors de la propagation est inférieure à celle relâchée par une fissure isolée. Examinons le taux de restitution d'énergie réel en prenant en compte la présence de fissures pré-existantes (figure 5.19) à une distance H_1 et H_2 de la fissure. Nous pouvons estimer le taux de restitution :

$$G = \frac{\bar{E}_f \epsilon^2 \ell}{4} \left(\tanh\left(\frac{H_1}{\ell}\right) + \tanh\left(\frac{H_2}{\ell}\right) \right) \quad (5.16)$$

Le taux de restitution d'énergie et donc la vitesse de propagation sont alors inférieurs à ceux d'une fissure isolée. La propagation est même impossible ($G < G_c$) pour des fissures trop proches de fissures pré-existantes : les fissures s'arrêtent alors, parfois après s'être un peu propagé en raison de phénomènes dynamiques (comme nous l'avons noté dans la figure 5.8).

Notons enfin que la normalisation est très dépendante de la valeur de la déformation appliquée à la couche ϵ qu'il est difficile de mesurer avec une grande précision. Nous observons ainsi une dispersion importante des données renormalisées. Nous observons cependant une claire tendance de croissance de la vitesse de propagation avec le taux de restitution d'énergie. La vitesse de propagation est donc un outil permettant de déterminer le taux de restitution d'énergie locale autour d'une fissure qui est une fonction du paysage des fissures qui l'entourent.

5.6 Empilement de couches d'argent et d'oxyde : fragile ou ductile ?

Nous avons caractérisé la propagation des fissures dans une monocouche fragile d'oxyde de zinc. Cependant la plupart des films d'intérêt industriel sont des multicouches composées d'une alternance de couches métalliques et de couches d'oxyde. Nous étudions un exemple d'une telle multicouche modèle : une couche d'argent est déposée entre deux couches d'oxyde. Nous choisissons des empilements en sandwich pour maintenir une adhésion avec le substrat constante et empêcher l'oxydation de l'argent en le protégeant par une couche d'oxyde de zinc. Ce multicouche présente des propriétés optiques intéressantes qui ont une application industrielle pour Saint-Gobain. Pour alléger la description de la situation expérimentale dans la suite du texte, nous introduisons une nouvelle convention terminologique : les empilements sont caractérisés par les épaisseurs successives des trois couches (x, y, z) , x correspondant à l'épaisseur de la première couche d'oxyde de zinc en nm (déposée sur le substrat), y à celle de la couche intermédiaire d'argent, z à la couche supérieure d'oxyde de zinc.

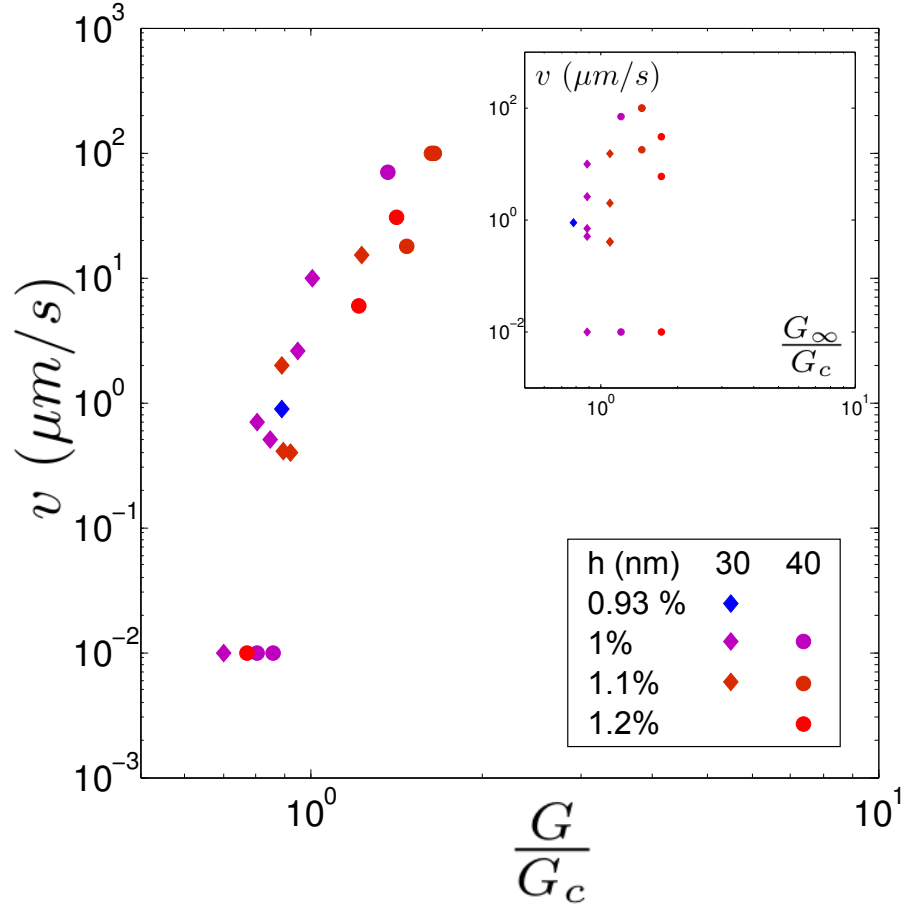


FIGURE 5.19: Vitesse de propagation des fissures en $\mu\text{m/s}$ d'une couche de monoxyde de zinc de 30 et 40 nm en fonction du taux de restitution d'énergie de la fissure $G = \ell E \epsilon^2 / 4 (\tanh(H_1/\ell) + \tanh(H_2/\ell))$ où H_1 et H_2 sont les distances aux fissures les plus proches. (Insert) Si nous ne tenons pas compte de l'interaction entre fissures et que nous considérons simplement le taux de restitution d'énergie de fissures isolées G_∞ , les vitesses sont mal décrites.

Nous commençons par examiner le cas limite d'un multicouche dont l'épaisseur de la couche ductile d'argent est beaucoup plus grande que celle d'oxyde (section 5.6.1). Nous examinerons ensuite les cas intermédiaires plus ou moins fragiles ou ductiles en variant les épaisseurs d'argent et d'oxyde de zinc (section 5.6.2).

5.6.1 Moncouche ductile d'argent.

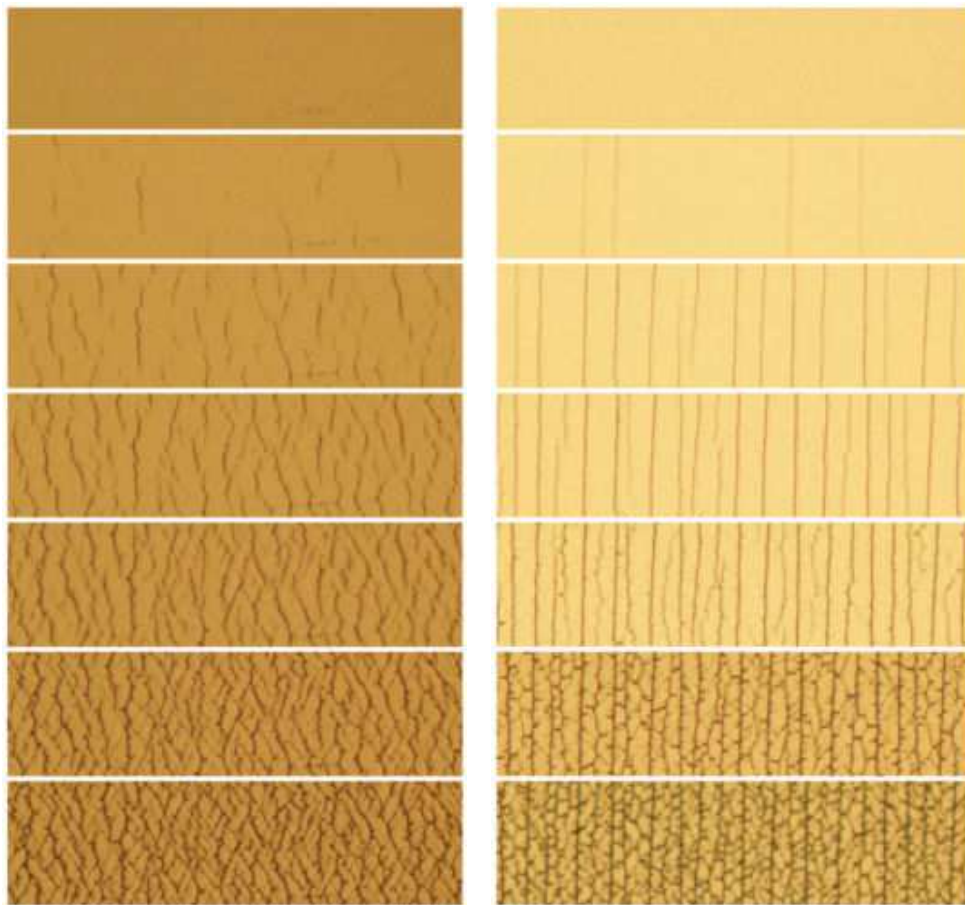


FIGURE 5.20: (A) Fragmentation d'une couche ductile composée d'un empilement (ZnO,Ag,ZnO) de (10, 60, 10) nm. (B) Fragmentation d'une couche fragile-ductile composée d'un empilement (ZnO,Ag,ZnO) de (15, 40, 10) nm. Les premières fissures se propagent avec des caractéristiques fragiles en traversant l'échantillon. Les fissures suivantes se propagent avec une caractéristique ductile sur de petites longueurs.

Un film métallique mince soumis à un essai de traction uniaxiale rompt pour de très faibles déformations. Keller *et al.* (1996) observent par exemple la

ruine d'un film mince de cuivre de 200 nm d'épaisseur pour une déformation de 0.5%. Juste au-dessus de la limite d'élasticité, la déformation se localise rapidement dans des zones de l'échantillon entraînant la formation de bandes de cisaillement ou de zones de striction. Le mécanisme de croissance de l'instabilité repose sur l'amincissement localisé dans certaines zones du film qui entraîne un adoucissement (strain softening) géométrique et une augmentation des déformations dans la zone localisée. Ceci augmente l'endommagement et favorise la fracture près du cou. Cependant, lorsque le film mince est déposé sur un substrat flexible, la déformation critique d'apparition de l'instabilité de striction peut-être repoussée à des grandes déformations. Expérimentalement, des films de cuivre ont ainsi été déformés à 50% avant rupture (Lu *et al.* (2007)). La contrainte du substrat empêchant la croissance de l'instabilité est levée si la couche délamine du substrat. Une bonne adhésion entre la couche et le substrat est donc nécessaire pour conserver l'intégrité du film à grande déformation.

Observons la propagation de fissures dans un film mince d'argent de 40, 60 ou 80 nm d'épaisseur entouré de deux fines couches de 10 nm de ZnO, déposées sur un substrat d'ETFE. L'apparition des premières fissures a lieu pour des déformations assez faibles mais néanmoins supérieure au cas fragile ($\epsilon_c = 3.2\%$ pour (10,40,10) nm, $\epsilon_c = 4.3\%$ pour (10,60,10) nm, $\epsilon_c = 4.1\%$ pour (10,80,10) nm). L'adhésion entre le substrat et la couche n'est pas suffisante pour empêcher l'endommagement. Le mode de propagation de la fissure est cependant très différent de celui observé pour une couche fragile. De petites fissures très localisées apparaissent sans traverser l'échantillon (figure 5.20A). Les fissures se propagent sur de faibles longueurs puis s'arrêtent. Comme les fissures se propagent sur de petites longueurs, elles déchargent peu d'énergie élastique dans le substrat lors de leur propagation et l'écrantage des autres points de nucléation est moins efficace que dans le cas fragile. Nous observons ainsi de nombreux points de nucléation conduisant à une augmentation de la probabilité d'interaction entre les fissures. Nous obtenons un motif de fissures en treillis, avec une distance typique entre fissures qui décroît avec la déformation appliquée.

Une description uniaxiale n'est plus suffisante, la direction de propagation n'étant plus perpendiculaire à la direction de sollicitation. À grande déformation, nous observons une direction privilégiée de propagation de l'endommagement pour un angle donné par rapport à la direction de sollicitation (figure 5.21). Contrairement au cas fragile, où les fissures se propagent perpendiculairement, nous observons une propagation pour un angle de l'ordre de 50° . Cette direction est proche de la direction de contrainte de cisaillement maximale (bande de cisaillement inclinée à 45°). L'effet de la compression transverse du substrat devrait corriger la direction de cisaillement et pourrait expliquer ce désaccord.

Nous allons maintenant considérer les états intermédiaires où les couches d'oxyde et d'argent présentent des épaisseurs similaires.

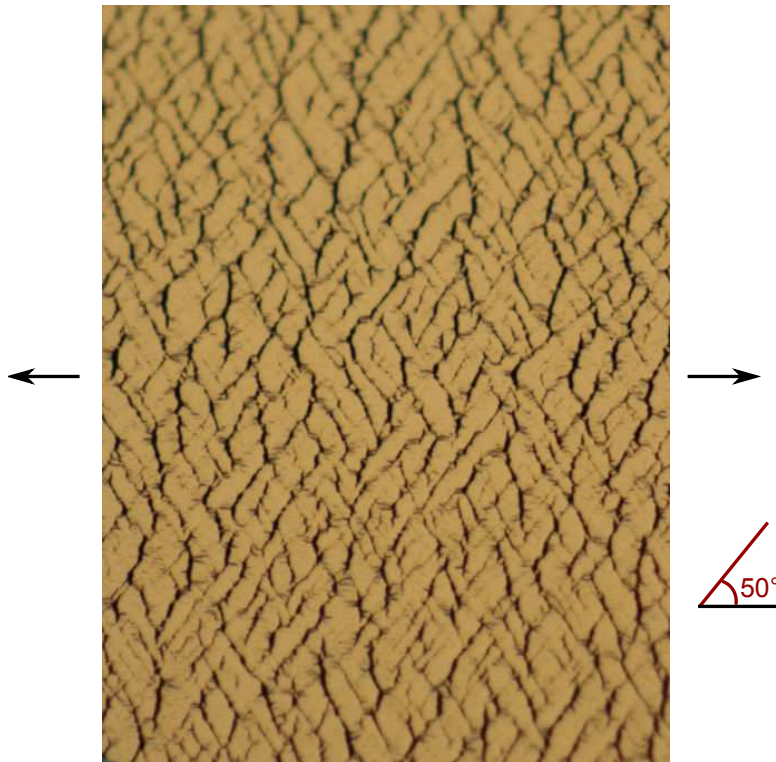


FIGURE 5.21: Motifs de fissures d'un multicouche majoritairement ductile (10,80,10) nm déposé sur un substrat de polymère. L'endommagement est localisé dans des bandes orientées à environ 50° de la direction d'étirement.

5.6.2 Multicouche d'argent et d'oxyde de zinc

Caractérisation par mesure de la résistance électrique

Mesurons la variation de la résistance électrique avec la déformation pour deux empilements comprenant une couche de 40 nm d'argent protégée par 10 nm d'oxyde (figure 5.22). La résistance est mesurée en 2 points séparés de 5 cm. Les résistances à déformation nulle R_0 des deux empilements sont très proches (de l'ordre de $20\ \Omega$), la conduction étant principalement assurée par la couche d'argent. Pour des couches majoritairement fragiles (50,40,10) nm, nous observons une très forte augmentation de la résistance dès l'apparition des premières fissures (la résistance est 20 fois plus élevée pour une déformation de l'ordre de 5%). Pour des empilements majoritairement ductiles (10,40,10) nm, l'augmentation de la résistance est plus lent et la conductivité électrique est maintenue même à très grande déformation (la résistance est 4 fois plus élevée pour une déformation de l'ordre de 20%). Bien que cette propriété soit peu exploitable pratiquement (pour qu'elle soit industriellement exploitable, l'augmentation de la résistance doit être inférieure à 10% de la

résistance initiale), cette mesure met en évidence une différence de propagation des fissures dans les empilements. Les fissures transverses se propageant tout le long de l'échantillon observées dans le cas fragile sont remplacées par des fissures plus sinueuses. La conductivité est maintenue grâce au maintien de ponts conducteurs entre les fissures. Le motif final en treillis permet le maintien de la conduction de la couche même à grande déformation.

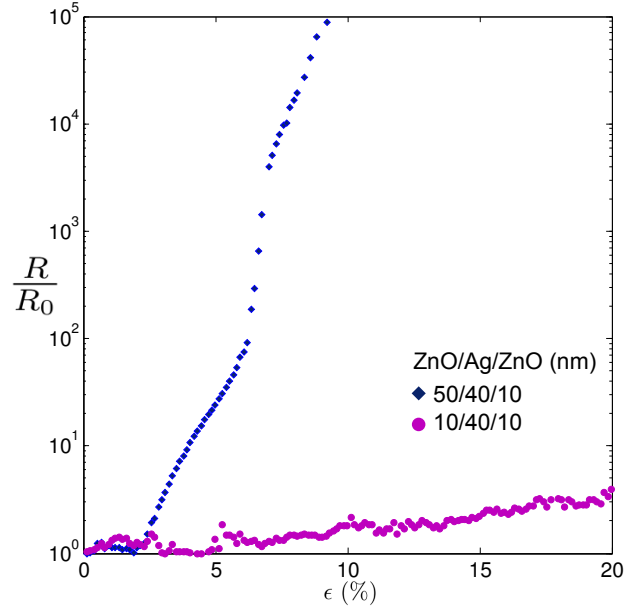


FIGURE 5.22: Résistance électrique de la couche R normalisée par la résistance sans déformation R_0 mesurée en fonction de la déformation imposée ϵ . La résistance d'une couche contenant beaucoup de ZnO (empilement de 40 nm d'argent déposé sur 50 nm d'oxyde) augmente de façon importante après l'apparition des premières fissures. Lorsque la proportion d'argent est plus importante (empilement de 40 nm d'argent déposé sur 10 nm d'oxyde), la résistance reste faible pour des déformations importantes.

Motifs fragiles ou ductiles ?

En jouant avec les épaisseurs de la couche métallique et de la couche d'oxyde, nous observons une transition entre des motifs fragiles (fissures transverses à la direction de propagation) lorsque l'épaisseur de la couche d'oxyde est importante (pour des empilements (ZnO,Ag,ZnO) d'épaisseur (30,10,10) nm ou (100,40,10) nm par exemple) et des motifs ductiles (figure 5.20A fissures sinueuses à 50°) lorsque l'épaisseur de la couche d'argent est importante et majoritaire (pour des empilements (ZnO,Ag,ZnO) d'épaisseur (10,40,10) nm, (10,60,10) nm, (10,80,10) nm). Une situation intermédiaire où le motif de propagation évolue avec le chargement (figure 5.20B) est observée

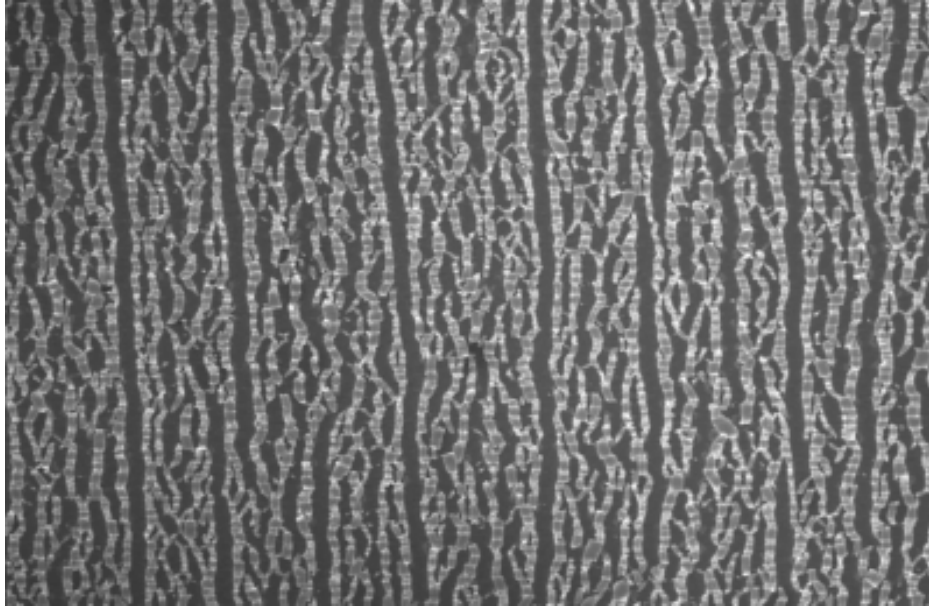


FIGURE 5.23: Motifs de fissures d'une couche (ZnO,Ag,ZnO) d'épaisseur (10,20,10) nm d'argent déposée sur un substrat de polymère à grande déformation observés au MEB. Nous notons la propagation initiale de fissures fragiles suivie d'une propagation sinueuse régulièrement espacée.

dans des conditions limites (par exemple pour un empilement (10,20,10) ou (15,40,10) nm). Nous observons alors des fissures traversantes à faible chargement puis des fissures sinueuses se propageant entre celles-ci à plus grande déformation. En adoptant une description simplifiée, il existe en effet deux seuils de propagations indépendants :

- un seuil de propagation dans la couche d'oxyde pour une déformation de l'ordre de 1%. Plus la couche d'oxyde est épaisse, plus ce seuil est faible (figure 5.7)
- un seuil d'initiation de la formation de la striction dans la couche ductile (de l'ordre de 3%)

Les motifs observés à grande déformation laissent alors apparaître deux longueurs caractéristiques (figure 5.23). Une grande longueur d'interaction entre fissures séparant les fissures traversantes correspondant à la densité de fissures obtenues par le modèle de déchargement de la couche à ϵ_s). Une petite longueur entre fissures ductiles similaire à la longueur de fragment obtenue à la saturation dans le cas d'une monocouche fragile.

5.7 Conclusions et prolongements

Fragmentation d'une couche fragile rigide sur un substrat accommodant

Nous avons étudié le processus de fragmentation dans des couches nanométriques d'oxyde de zinc déposé sur un substrat de polymère. Au-dessus d'une déformation critique, la propagation des fissures est d'abord gouvernée par la distribution de défauts dans la couche. L'importante taille de décharge élastique autour des fissures entraîne l'interaction des fissures entre-elles pour des déformations modérées. Nous pouvons alors décrire la densité de fissures en adoptant une approche simple unidimensionnelle pour décrire le transfert de contrainte entre la couche et le substrat. Une description élastique permet de décrire correctement le nombre de fissures à faible déformation.

Une extension à un modèle élasto-plastique

Pour des déformations plus importantes, le nombre de fissures prédites est cependant supérieur à celui observé expérimentalement en raison de la localisation de la déformation dans le substrat. Nous proposons un incrément du modèle pour tenir compte de la plasticité du substrat qui correspond mieux à l'expérience. Cette description permet de passer continuellement du modèle élastique au régime plastique et de prédire ainsi la saturation de la fragmentation observée expérimentalement à grande déformation.

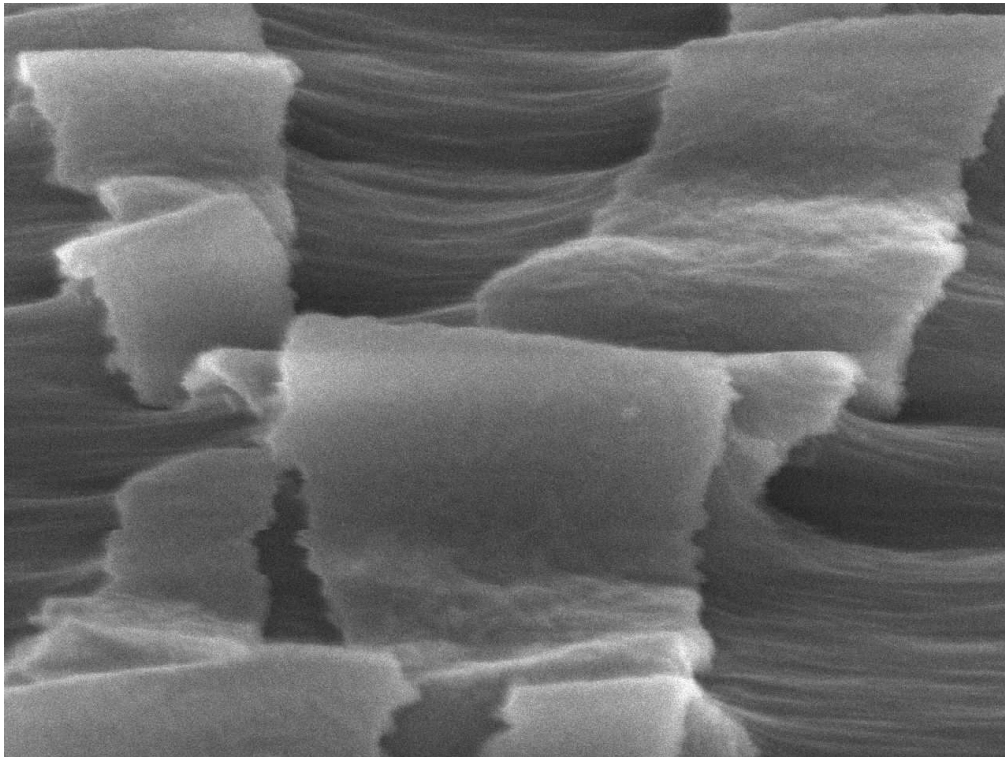
En présence d'une couche ductile

Nous observons la propagation de fissures dans des couches comprenant une épaisseur importante d'argent. Les motifs de fractures, sinueux, sont très différents de ceux observés pour la propagation de fissures dans les couches fragiles d'oxyde. En jouant avec les épaisseurs relatives de la couche d'argent et de la couche d'oxyde, nous obtenons des motifs présentant les deux caractéristiques selon la gamme de déformation appliquée. En plus d'interagir avec les anciennes fissures, les nouvelles fissures peuvent également interagir avec les cloques de délamination dues à la compression transverse du substrat. Nous allons décrire les différentes instabilités observées suite à cette compression dans le chapitre suivant.

CHAPITRE

6

Cloques ou rides : renforcement d'une interface par dissipation plastique



Maintien de l'adhésion à grande déformation dans une couche d'oxyde de zinc et d'argent déposée sur un substrat de polymère.

Dans le chapitre précédent, nous nous sommes intéressés aux processus de fragmentation induits par une traction uniaxiale. La direction transverse est cependant sous compression du fait du désaccord des coefficients de Poisson de la couche et du substrat puis de l'écoulement plastique du substrat. Nous nous intéressons dans ce chapitre aux rides et aux cloques qui apparaissent successivement dans cette direction.

De nombreuses études récentes ont été menées pour caractériser le seuil d'apparition et l'évolution de ces motifs afin de les éviter ou de les utiliser comme un outil de structuration simple et peu onéreux du substrat flexible (Sun *et al.* (2006)). Nous allons brièvement présenter les principaux résultats permettant de comprendre la sélection de la taille des ondulations ou des cloques de délamination d'un film rigide déposé sur un substrat flexible (section 6.1). Nous étudierons ensuite ces instabilités dans une monocouche d'oxyde de zinc (section 6.2) puis nous nous intéresserons à l'influence de la présence d'un film ductile d'argent dans des multicouches d'intérêt industriel (section 6.3).

6.1 Introduction : rides et cloques

6.1.1 Rides de compression

Comprimons un substrat élastique mou sur lequel une fine couche rigide est déposée : des rides de compression apparaissent (figure 6.1A). Cette instabilité a été décrite expérimentalement et théoriquement par Bowden *et al.* (1998) puis proposée comme outil de métrologie pour déterminer les modules élastiques de films de polymère (Stafford *et al.* (2004)). Les rides de la peau apparaissent pour des raisons similaires (l'épiderme est une membrane rigide tandis que le derme se déforme comme un substrat mou). La longueur d'onde des rides sélectionnée est dictée par un équilibre entre l'énergie de flexion de la couche qui favorise les grandes longueurs d'ondes et l'énergie de compression du substrat qui favorise les petites longueurs d'ondes.

Qualitativement, considérons une déformation sinusoïdale de la membrane de longueur d'onde λ et d'amplitude faible $A \ll \lambda$ (figure 6.1B). La courbure typique des rides est proportionnelle à A/λ^2 et l'énergie de flexion de la couche par unité de surface, proportionnelle en l'inverse de la courbure au carré prend la forme :

$$\mathcal{E}_f \sim E_f h_f^3 \frac{A^2}{\lambda^4}$$

À l'équilibre, cette énergie compense l'énergie de compression induite par le flambage dans le substrat. Comme la déformation est essentiellement localisée sur une profondeur de l'ordre de λ , la déformation est d'ordre $\epsilon \sim A/\lambda$ et l'énergie de compression par unité de surface s'écrit :

$$\mathcal{E}_e \sim E_s \lambda \frac{A^2}{\lambda^2}$$

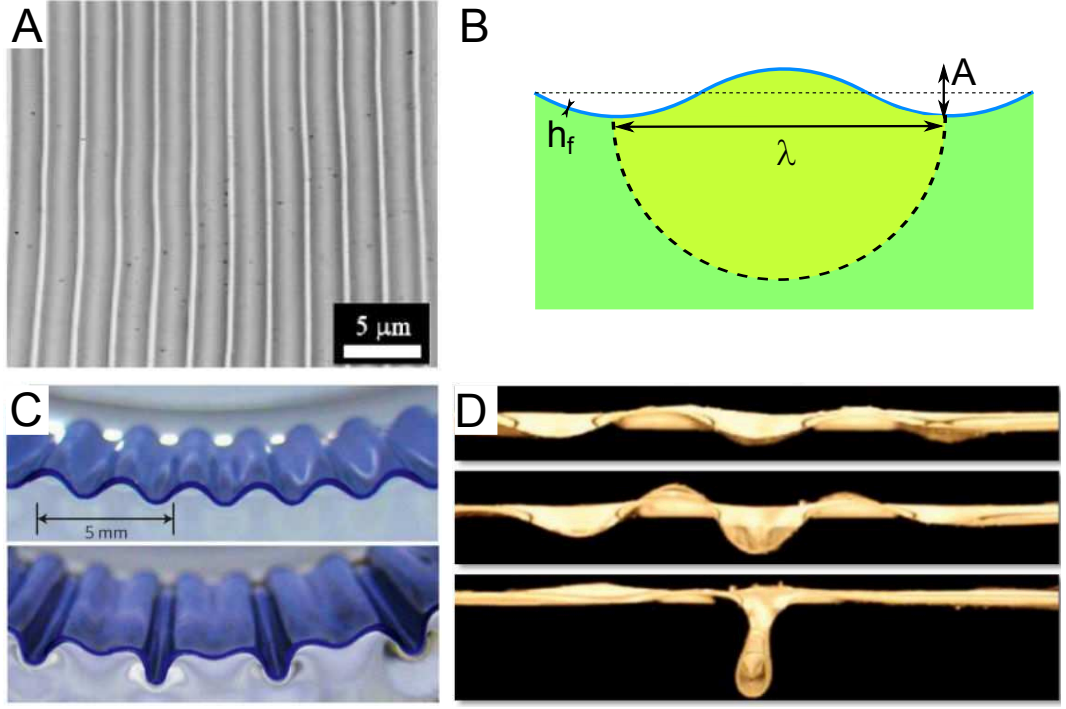


FIGURE 6.1: (A) Formation de rides d'un film mince déposée sur un substrat flexible. (B) L'instabilité est caractérisée par sa longueur d'onde λ et son amplitude A . (C) Expérience macroscopique démontrant la localisation par doublement de période pour des compressions plus importantes (Brau *et al.* (2010)). (D) Instabilité de surface d'un film de polymère mise en compression à la surface de l'eau (Pocivavsek *et al.* (2008))

L'équilibre de ces deux énergies conduit à la sélection d'une longueur d'onde :

$$\lambda \sim \left(\frac{E_f}{E_s}\right)^{1/3} h_f$$

Plus rigoureusement, nous pouvons montrer (en suivant par exemple Brau *et al.* (2013)) que pour un substrat présentant un coefficient de Poisson de 0.5, la longueur d'onde des rides pour des petites déformations (dans la limite d'une instabilité linéaire) est :

$$\lambda = 2\pi \left(\frac{3B}{E_s}\right)^{1/3} h_f$$

où $B = \bar{E}_f h_f^3 / 12$ est le module de flexion de la membrane.

Augmentons la compression, nous observons l'apparition d'une instabilité secondaire avec doublement de période et focalisation périodique (figure 6.1C).

La description de cet état nécessite de considérer les effets non-linéaires dus aux grandes déformations dans le substrat comme décrit par Brau *et al.* (2010).

Une situation différente mais qui conduit à des motifs semblables est obtenue lors de la compression d'une membrane placée à la surface d'un liquide (Pocivavsek *et al.* (2008); Piñeirua *et al.* (2013)). La flexion de la feuille est alors en compétition avec la pression hydrostatique du liquide et la longueur d'onde des rides est cette fois :

$$\lambda = 2\pi \left(\frac{B}{\rho g} \right)^{1/4}$$

Cependant, lorsque l'on augmente la compression, la déformation se localise dans le pli central de la membrane (figure 6.1D). À grande déformation, alors que la membrane déposée sur une fondation élastique présente un doublement de période, celle déposée sur un liquide est plane, sauf dans une région centrale de taille λ où toute la déformation est localisée.

6.1.2 Cloques de délamination

Cependant si l'adhésion avec le substrat solide est moins importante, nous observons l'apparition de cloques. De telles structures ont été caractérisées sur un substrat élastique (Vella *et al.* (2009)) et sont utilisées en métrologie pour mesurer l'énergie d'adhésion de la couche avec le substrat. L'énergie d'adhésion (qui favorise les cloques courtes) s'oppose alors à l'énergie de flexion (qui favorise les cloques allongées). En loi d'échelle, pour une cloque de longueur λ et de hauteur a , la courbure typique $\kappa = a/\lambda^2$ entraîne une énergie de flexion par unité de largeur $\mathcal{E}_f \sim B\lambda a^2/\lambda^4$ tandis que l'énergie correspondante au coût de l'interface par unité de largeur est en $\mathcal{E}_a \sim \Gamma\lambda$. En égalant ces deux effets, nous obtenons un rayon de courbure au point de décollement de l'ordre d'une longueur comparant flexion à adhésion classiquement définie comme la longueur élastocapillaire (Roman & Bico (2010)) :

$$\frac{\lambda^2}{a} \sim \sqrt{\frac{B}{\Gamma}}$$

6.2 Compression d'une monocouche d'oxyde de zinc

Observons l'apparition de rides et de cloques sur une monocouche de ZnO déposée sur un substrat d'ETFE. L'expérience est réalisée par traction uniaxiale sous AFM. Après fissuration transverse, l'écoulement plastique entraîne des contraintes compressives perpendiculaires. Dans le chapitre précédent, nous avons décrit la propagation séquentielle de fissures transverses définissant des bandes de largeurs données. Notre description unidimensionnelle ne tenait

pas compte de la compression transverse. Cependant si le coefficient de Poisson du film est inférieur à celui du substrat, la couche rigide est en compression relative. Notons que la compression du substrat est d'abord caractérisée par son coefficient de Poisson puis par son écoulement plastique avec un coefficient de Poisson effectif $\nu_s = 0.5$. Cette compression entraîne le flambage de la couche. Nous allons considérer le flambage d'une bande unidimensionnelle de largeur donnée (imposée par le processus de fragmentation) mise en compression. Nous décrivons d'abord l'ondulation localisée visible à faible déformation (section 6.2.1), les rides de compression obtenues pour des déformations plus importantes (section 6.2.2) puis nous caractérisons l'apparition des cloques de délaminage (section 6.2.3).

6.2.1 Chargement inhomogène : ondulation localisée

À l'AFM, nous observons l'apparition de rides localisées près des fissures à faible déformation (figure 6.2A). Ces rides n'envahissent pas immédiatement toute la largeur des languettes. La compression n'est pas homogène dans la couche du fait du déchargement dans la direction transverse près des fissures.

Pour tenir compte de la distribution spatiale de la compression, Frank *et al.* (2009) ont proposé un modèle bidimensionnel en considérant une longue bande de largeur $2L$. Reprenons le modèle élastique de l'équation 5.3 :

$$\bar{E}_f h_f \frac{d^2 u}{dx^2} = k(u - \epsilon x) \quad (6.1)$$

en considérant son effet sur la direction transverse $\epsilon_y = -\nu_s \epsilon$. D'après la loi de Hooke, les contraintes dans la direction x (resp. y) σ_x (resp. σ_y) sont liées aux déformations par :

$$\begin{cases} \sigma_x = \bar{E}_f(\epsilon_x + \nu_f \epsilon_y) = \bar{E}_f(\epsilon_x - \nu_f \nu_s \epsilon) \\ \sigma_y = \bar{E}_f(\epsilon_y + \nu_f \epsilon_x) = \bar{E}_f(-\nu_s \epsilon + \nu_f \epsilon_x) \end{cases}$$

Le déplacement s'écrit comme précédemment, $u = \epsilon(x + A \sinh(x/\ell))$, où A est une constante que nous déterminons en annulant la contrainte selon x sur les lèvres de la fissure en $x = \pm L$. Nous obtenons alors la déformation selon x , en remarquant que $\epsilon_x(L) = \nu_f \nu_s \epsilon$:

$$\epsilon_x = \epsilon \left(1 - (1 - \nu_f \nu_s) \frac{\cosh(x/\ell)}{\cosh(L/\ell)} \right) \quad (6.2)$$

Nous traçons les contraintes correspondantes dans la direction transverse $\sigma_y(x)$ (figure 6.3) pour différents rapports L/ℓ :

$$\begin{aligned} \sigma_x(x) &= \bar{E}_f \epsilon \left((1 - \nu_f \nu_s) \left(1 - \frac{\cosh(x/\ell)}{\cosh(L/\ell)} \right) \right) \\ \sigma_y(x) &= \bar{E}_f \epsilon \left(\nu_f \left(1 - (1 - \nu_f \nu_s) \frac{\cosh(x/\ell)}{\cosh(L/\ell)} \right) - \nu_s \right) \end{aligned}$$

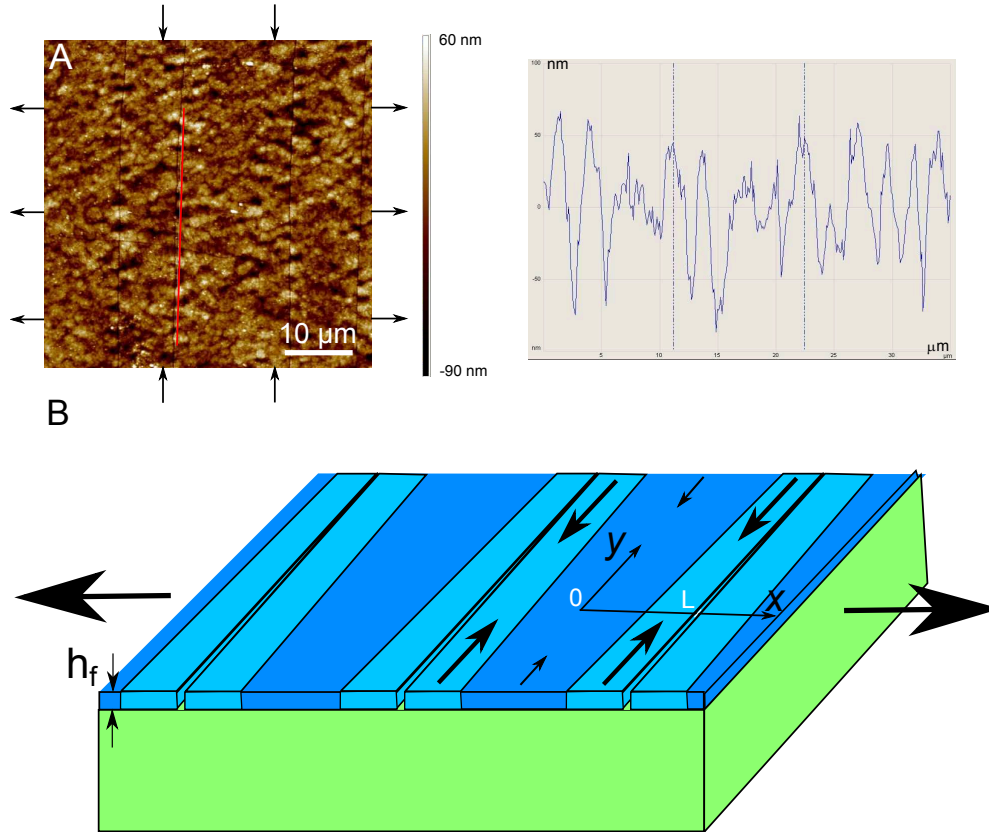


FIGURE 6.2: (A) À faible déformation, les ondulations sont confinées sur une faible zone autour des fissures. Nous traçons le profil de hauteur pour une ligne parallèle à la fissure (ligne rouge) distante d'environ 500 nm de la fissure (visible en noir sur l'image AFM). (B) La compression dans la couche σ_y n'est pas uniforme selon x en raison du déchargement élastique près des fissures. Pour de grands fragments, la partie centrale du fragment est moins comprimée que la zone proche des fissures.

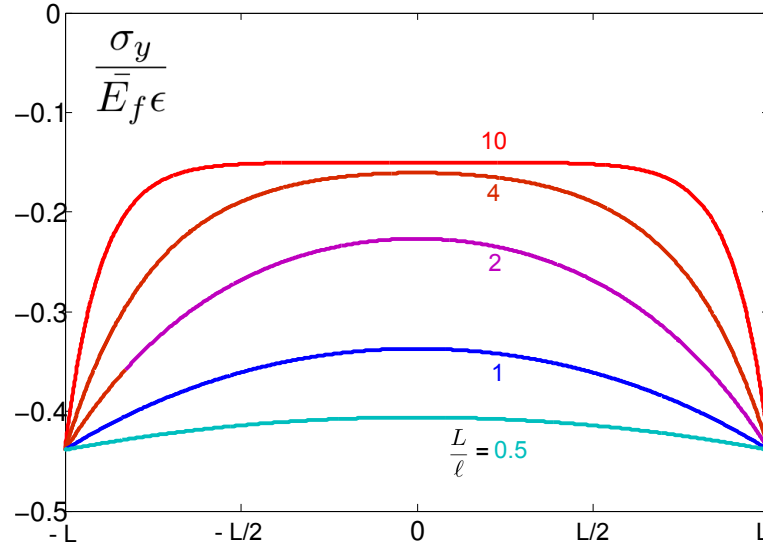


FIGURE 6.3: La contrainte dans la direction transverse $\sigma_y(x)$ en fonction du rapport entre la longueur des fragments L et la longueur de déchargement élastique ℓ (pour $\nu_s = 0.5$ et $\nu_f = 0.35$). Pour les grands fragments, la compression est localisée près des fissures. Pour les petits fragments, toute la longueur du fragment est en compression.

Pour des petites déformations, la largeur des languettes (qui correspond à la distance entre fissures) est importante devant la longueur de décharge élastique ℓ (par exemple pour $L/\ell = 10$ en rouge sur la figure 6.3) : la compression dans la région près de la fissure est beaucoup plus importante que celle au centre du fragment (figure 6.2B). À plus grande déformation, les fragments sont plus petits (par exemple $L/\ell = 0.5$ en cyan sur la figure 6.3) et toute la languette est alors en compression quasi-uniforme. Cette augmentation de la surface des ondulations au fur et à mesure de la fragmentation est visible expérimentalement mais difficile à caractériser précisément (la définition du seuil d'ondulation n'étant pas aisément déterminable à l'AFM).

6.2.2 Rides

Pour des compressions plus importantes, les ondulations sont présentes sur toute la longueur de la languette. Nous allons alors considérer que la compression est homogène dans la largeur de la languette (ce qui est raisonnable car la courbe de contrainte s'aplatit à petit L/ℓ) et nous comparons les longueurs d'ondes de plissement à la longueur d'onde élastique décrite par Brau *et al.* (2010) :

$$\lambda = 2\pi h_f \left(\frac{E_f}{E_s} \right)^{1/3} \left(\frac{(1 + \nu_s)(3 - 4\nu_s)}{12(1 - \nu_f)(1 - \nu_s)} \right)^{1/3} \quad (6.3)$$

Les résultats sont très bruités, la longueur d'onde des rides n'étant pas très robuste dans nos expériences (figure 6.4). L'accord est cependant raisonnable, au vu des nombreuses approximations qui consistent à ignorer l'histoire de la formation des rides (à partir de l'ondulation localisée près des fissures à plus faible déformation) et l'effet de la plasticité du substrat.

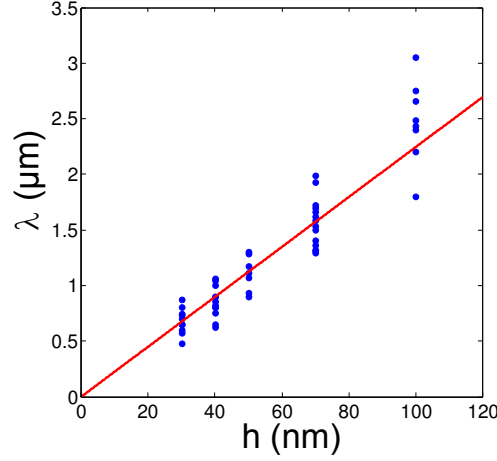


FIGURE 6.4: Longueur d'onde des rides en fonction de leur épaisseur. L'instabilité est compatible avec la description standard obtenue sur des systèmes modèles (ligne rouge, théorie issue de Brau *et al.* (2013)).

6.2.3 Cloques : énergie d'adhésion, nombre de cloques

Pour des déformations plus importantes, l'instabilité de rides évolue et conduit à l'apparition de cloques. À l'AFM, nous suivons l'évolution de l'instabilité de compression au fur et à mesure du chargement. Au-dessus du seuil d'apparition des premières cloques, nous observons une ride de compression se déstabiliser et se transformer en cloques (figure 6.5). Nous estimons l'énergie d'adhésion à partir de la forme de la cloque puis nous mesurons la distance entre cloques pour des compressions croissantes du substrat. Enfin, nous discutons les seuils d'apparition des instabilités de rides et des cloques.

Mesure de l'énergie d'adhésion : forme de la cloque

Mesurons le profil des cloques de délaminage à l'AFM juste après leur formation (figure 6.6). Nous pouvons estimer l'énergie de rupture de l'interface faible Γ à partir de leur forme. Pour des monocouches d'oxyde, nous observons des cloques de longueurs $\lambda = 2.45 \pm 0.2 \mu\text{m}$ et de hauteur $a = 490 \pm 50 \text{ nm}$ (respectivement $\lambda = 1.2 \pm 0.2 \mu\text{m}$, $a = 240 \pm 50 \text{ nm}$) pour une monocouche d'épaisseur $h_f = 50 \text{ nm}$ (resp. 30 nm). D'après Vella *et al.* (2009), l'énergie de

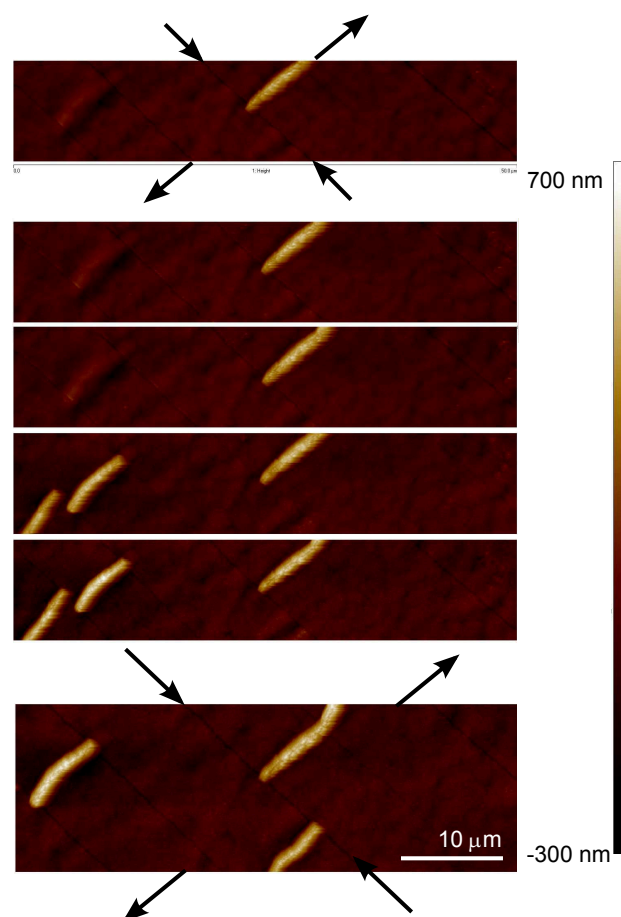


FIGURE 6.5: Déstabilisation de rides de compression en cloques de délamination observée à l'AFM. Le chargement croît de l'image supérieure à l'image inférieure. À partir de l'instabilité de rides de compression, la déformation se localise et deux cloques de délamination apparaissent sur la 4^{ème} image. Une autre cloque apparaît sur la dernière image.

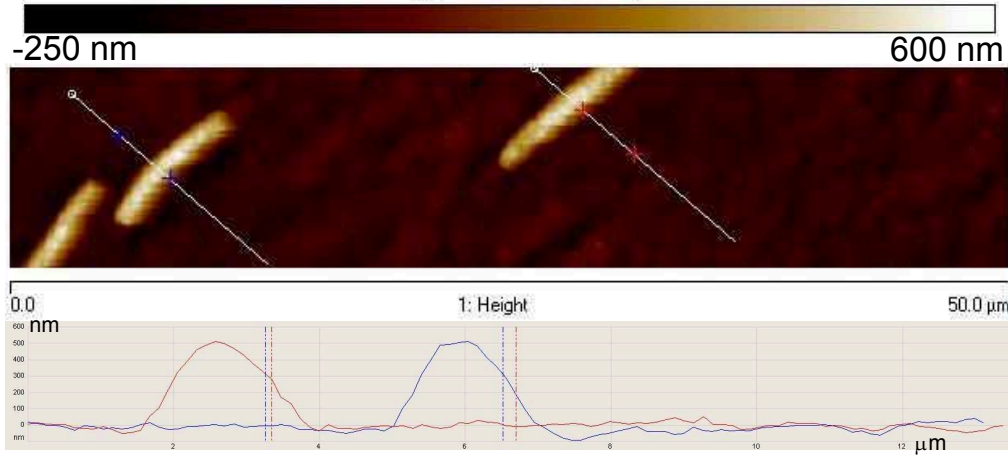


FIGURE 6.6: La forme des cloques de délaminage d'une monocouche d'oxyde de zinc permet de revenir à l'énergie d'adhésion entre la couche et le substrat. La forme est robuste pour différentes cloques pour une compression donnée.

rupture correspondante s'écrit simplement :

$$\Gamma = 2\pi^4 \frac{B\delta^2}{\lambda^4} \quad (6.4)$$

Nous obtenons donc une énergie de rupture de 1.5 ± 0.6 N/m. La grande incertitude de la mesure provient de la mauvaise définition de la hauteur et de la largeur de la cloque, les cloques présentant souvent un renflement à leurs pieds. Une autre difficulté est d'obtenir des cloques ne présentant pas de fissures. En effet, les cloques se cassent souvent à leur sommet ou à leur pied (figure 6.7).

Nombres de cloques : interaction élastique

Nous caractérisons le seuil d'apparition de ces cloques et l'évolution de leur nombre dans une monocouche d'oxyde de zinc. Selon Yu & Hutchinson (2002), nous pouvons estimer une zone de déchargement autour d'une cloque pour un substrat mou. Cette taille est d'autant plus grande que le substrat est mou. Nous avons

$$\ell_{YH} = \left(1 + \frac{E_f}{E_s}\right) h_f \quad (6.5)$$

Le problème est donc très similaire à la description de la densité de fissures que nous avons examinée dans la section 5.3. Mesurons la distance entre cloques H en fonction de la compression imposée à la couche ϵ (figure 6.8). La compression est mesurée directement sur la couche en observant les déformations de repères tracés sur la couche. En normalisant la distance entre fissures

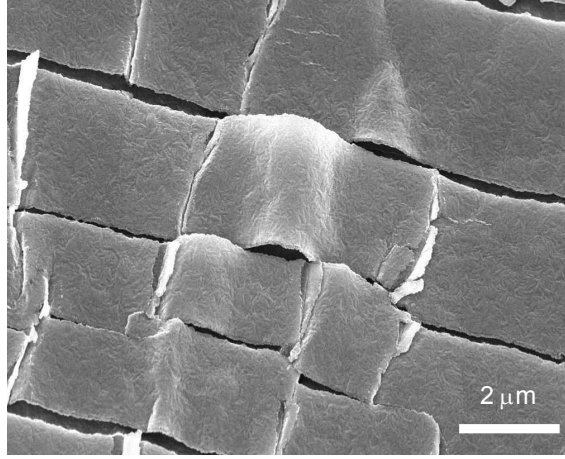


FIGURE 6.7: Des fissures se propagent parfois au centre ou au pied de la cloque (image MEB).

par la longueur de déchargement autour d'une cloque ℓ_{YH} , les courbes se superposent pour différentes épaisseurs de couche. Notons que la dépendance de la déformation avec l'épaisseur de la couche n'est pas très marquée. Nous pouvons espérer développer un modèle équivalent au problème de déchargement élastique des fissures pour examiner la taille typique entre cloques pour des déformations croissantes.

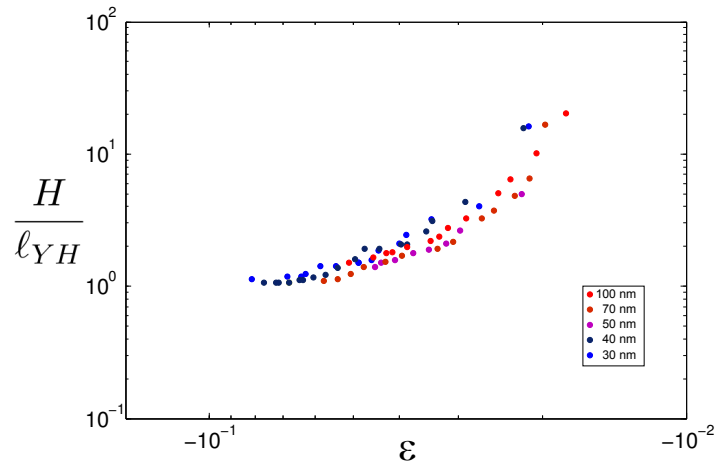


FIGURE 6.8: Distance moyenne entre cloques H normalisée par la longueur de déchargement autour d'une cloque ℓ_{YH} en fonction de la déformation de compression imposée par le substrat ϵ .

6.3 Compression d'un multicouche oxyde/argent.

Un maintien de l'adhésion étonnant à grande déformation

Lorsque nous introduisons une couche d'argent en sandwich dans la couche d'oxyde de zinc, nous observons un phénomène contre-intuitif. Même pour de très grandes déformations, l'adhésion entre la couche et le substrat perdure et il n'y a pas de formation de cloques. L'interface faible reste pourtant l'interface entre le multicouche et le polymère et l'énergie d'adhésion ne varie pas *a priori* puisque la couche d'oxyde de zinc en contact avec le polymère est déposée selon le même protocole. Les coefficients de Poisson de l'argent ($\nu = 0.37$) et de l'oxyde de zinc ($\nu = 0.36$) sont très proches, et le chargement n'est donc pas perturbé par l'ajout de la couche d'argent. La différence entre la délamination usuelle (figure 6.9A) et le maintien de l'adhésion est particulièrement parlante à grande déformation, où le substrat se déforme de façon importante lorsque l'adhésion entre la couche et le substrat est maintenue (figure 6.9B). Un tel maintien de l'adhésion à grande déformation est observé pour des empilements (10,10,10) nm, (10,20,10) nm, (10,20,15) nm, (10,40,10) nm, (10,40,20) nm, (15,40,10) nm, (10,60,10) nm et (10,80,10) nm. Des empilements d'épaisseurs proches délaminent à grande déformation (à titre d'exemple (20,10,10) nm, (10,20,20) nm, (20,20,10) nm, (10,20,20) nm, (20,40,10) nm et (10,40,30) nm présentent des cloques à grande déformation).

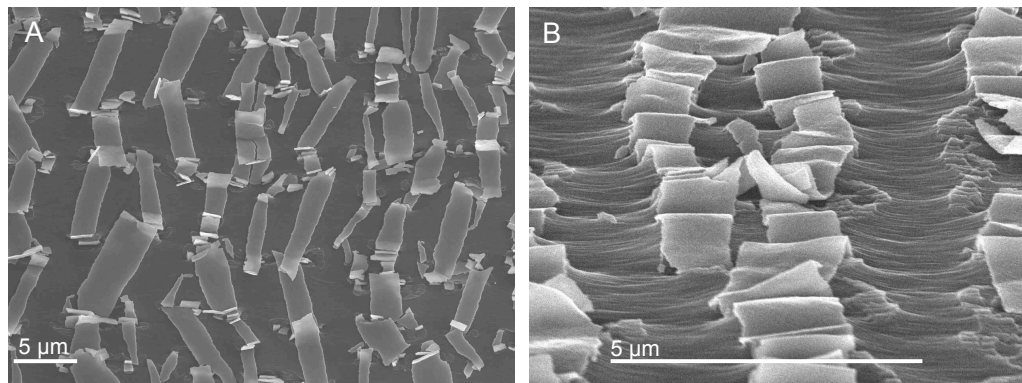


FIGURE 6.9: A. À grande déformation, un empilement fragile (100,10,10) nm présente des segments dont les longueurs sont définies par la saturation plastique du substrat B. Dans les mêmes conditions, un empilement ductile (10,40,10) nm reste en contact avec le substrat : la déformation imposée au substrat est alors très importante du fait du maintien de la cohésion avec la couche rigide.

Nous présentons succinctement une piste possible d'explication du renforcement de l'interface par dissipation ductile dans la couche d'argent.

Renforcement de l'interface par dissipation plastique

L'adhésion effective est en fait augmentée par la dissipation dans la couche ductile lors de la propagation de la fissure à l'interface. Cette situation a été abondamment étudiée théoriquement par Suo *et al.* (1993) (couramment dénommé modèle SSV) puis Wei & Hutchinson (1999) pour décrire la propagation d'une fissure se propageant à l'interface entre un milieu ductile et un milieu fragile. Le modèle SSV considère l'existence d'une fine bande élastique d'épaisseur D sans plasticité entre l'interface et la zone plastique (figure 6.10A). L'épaisseur de cette couche est laissée comme un paramètre libre caractéristique du matériau (de l'ordre de 10 à 100 nm). Sous l'hypothèse que les dislocations émises à partir du front de fissure ont un rôle limité dans la propagation de la fissure, cette description permet d'obtenir des contraintes suffisamment élevées en tête de fissure pour assurer la propagation. L'énergie effective de délamination Γ_{ss} par rapport à l'énergie de séparation Γ_0 dépend alors de l'épaisseur de la bande élastique D , la taille de la zone plastique active R_0 (de l'ordre du μm pour une couche métallique), de l'exposant d'écrouissage N et de la mixité modale ψ :

$$\frac{\Gamma_{ss}}{\Gamma_0} = F_{SSV} \left(\frac{R_0}{D}, N, \psi \right) \quad (6.6)$$

Nous pouvons appliquer cette description à notre situation expérimentale en identifiant simplement les paramètres. Nous considérons (figure 6.10B) que D s'identifie à l'épaisseur de la sous-couche d'oxyde (h_{ZnO}) et que la zone plastique active R_0 est limitée par l'épaisseur de la couche ductile d'argent (h_{Ag}). Nous faisons varier l'épaisseur de la couche ductile et sa distance à l'interface. Nous estimons l'énergie interfaciale à partir de la forme des cloques en faisant l'approximation (un peu grossière) que le module de flexion effectif est la moyenne pondérée par l'épaisseur des modules de flexion de chaque multicouche. Nous observons une augmentation (figure 6.10C) de l'énergie interfaciale effective Γ_{ss} normalisée par l'énergie d'adhésion sans couche ductile Γ_0 ainsi que du seuil d'apparition en déformation de la première cloque avec h_{Ag}/h_{ZnO} . Lorsque le rapport h_{Ag}/h_{ZnO} est supérieur à 1 (pour $h_{Ag}/h_{ZnO} = [1, 2, 4, 6, 8]$), la couche ne délamine pas même à grande déformation et nous ne pouvons plus caractériser l'adhésion. Les prédictions du modèle pour $\nu = 0.3$ issues de Wei & Hutchinson (1999) sont assez éloignées de nos points expérimentaux même si la tendance au renforcement de l'interface pour des R_0/D croissants est conforme à l'expérience.

Localisation à grande déformation

À grande déformation, l'adhésion avec le substrat est maintenue grâce au renforcement de l'énergie effective de l'interface. Nous observons alors des phénomènes de localisation de la déformation. Les formes obtenues sont compliquées et les motifs ne sont pas aussi marqués que ceux observés pour un

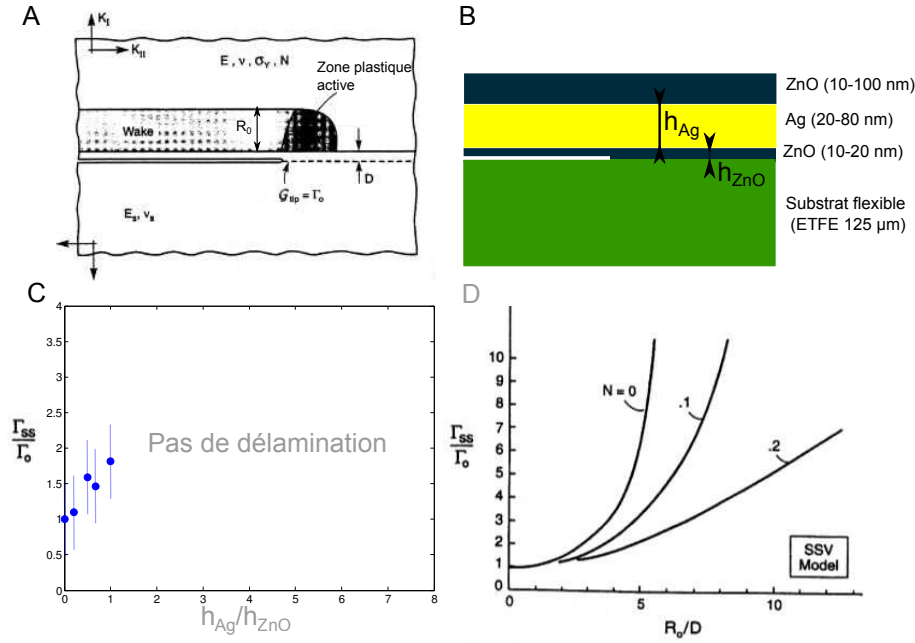


FIGURE 6.10: (A) Modèle SSV (Suo *et al.* (1993) décrivant le renforcement de l'énergie interfaciale par la dissipation dans un matériau ductile (figure extraite de Wei & Hutchinson (1999)). (B) Nous identifions simplement D à l'épaisseur de la sous-couche d'oxyde de zinc (h_{ZnO}) et R_0 à l'épaisseur de la couche d'argent (h_{Ag}) dans notre système expérimental. (C) Nous estimons l'énergie d'adhésion de la couche à partir de la forme des cloques. Pour des h_{Ag}/h_{ZnO} supérieurs à 1 (pour $h_{Ag}/h_{ZnO} = [1, 2, 4, 6, 8]$), la couche adhère à grande déformation, suggérant un renforcement de l'énergie d'adhésion. (D) Renforcement de l'adhésion par dissipation ductile selon Wei & Hutchinson (1999).

substrat élastique (doublement de période, figure 6.1C) ou un substrat fluide (localisation de toute la déformation dans un pli unique, figure 6.1D). Nous observons des motifs intermédiaires entre ces deux cas limites avec une localisation dans certains plis et des motifs rappelant le doublement de période observé sur un substrat élastique (figure 6.11).

6.4 Conclusion et ouverture

Ondulations, rides et cloques de délamination

Les désaccords de coefficient de Poisson de la couche et du substrat entraînent des contraintes compressives dans la direction transverse. À faible déformation, des ondulations confinées près des bords libres apparaissent. Nous

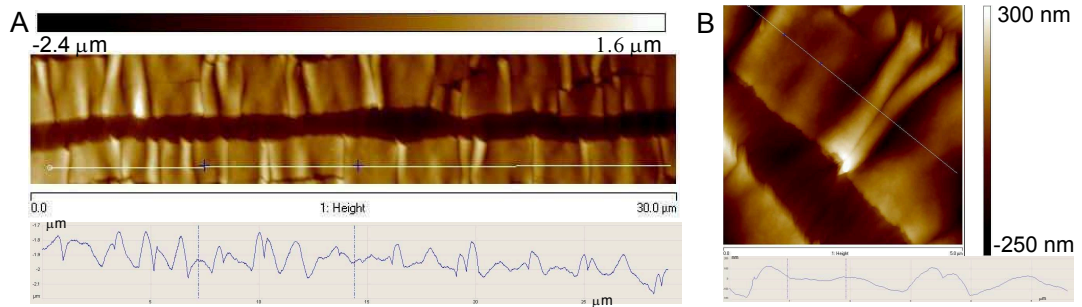


FIGURE 6.11: A. À grande déformation, si la couche ne délamine pas, la localisation se localise dans certains plis. B. Exemple de localisation rappelant les doublements de période observées par Brau *et al.* (2010)

observons ensuite des rides de compression, dont la longueur d'onde est raisonnablement décrite par les descriptions élastiques développées récemment. Pour des déformations plus importantes, les rides se déstabilisent en cloques de délamination. Leur profil nous permettent d'estimer l'énergie d'adhésion entre la couche d'oxyde et le substrat. Nous décrivons l'évolution du nombre de cloques en fonction de la déformation en tenant compte du déchargement élastique du substrat autour de la cloque.

Renforcement de l'interface par une dissipation plastique

Pour des empilements présentant une fine couche d'argent, nous observons que les couches ne délaminent pas du substrat même à grande déformation. Ce maintien de l'adhésion est très contre-intuitif, la nature de l'interface restant inchangée. Une piste d'explication est le renforcement de l'interface par la dissipation due à la ductilité de la couche d'argent décrite par le modèle SSV. Cette propriété ouvre la possibilité de renforcer l'énergie de fracture interfaciale d'un film mince simplement et sans intervenir directement sur l'interface : en recouvrant la couche existante d'une couche ductile, la dissipation dans la couche ductile augmente l'énergie interfaciale effective.

Ouverture expérimentale

Caractérisation des seuils de rides et cloques de délamination

Dans notre système expérimental, nous observons toujours l'apparition de rides avant la formation des cloques de délaminage. Avec Suomi Ponce, nous avons effectué des expériences modèles macroscopiques pour un film de plastique déposé sur un substrat élastomère à partir du dispositif expérimental de Vella *et al.* (2009). Nous varions l'adhésion pour essayer de caractériser les seuils d'apparition des rides et des cloques. Nous observons le même processus de déstabilisation à partir d'un réseau de rides localisées que dans l'expérience

microscopique. Ces seuils sont cependant très faibles et il est difficile d'obtenir un chargement uniforme du substrat pour d'aussi faibles déformations. Avec Fabian Brau (U. Mons), nous avons essayé de décrire la transition entre rides et cloques en considérant l'énergie relâchée dans chacun des états. Les résultats sont pour l'instant peu convaincants. Notons que contrairement à l'état ride qui est une instabilité élastique se déroulant au-dessus d'un seuil, l'apparition des cloques (de même que celle d'une fissure) est liée à l'existence d'un défaut suffisamment étendu pour permettre sa nucléation.

Interaction de deux cloques

Deux fissures interagissent en se branchant ou en s'évitant lorsqu'elles la distance de relâchement dans le substrat d'une des fissures interagit avec le relâchement de l'autre. De façon équivalente, deux cloques suffisamment proches interagissent. Nous observons de telles interactions dans les films d'oxyde ainsi que dans des expériences macroscopiques menées avec Suomi Ponce et Jérémy Hure (2012). Une étude plus systématique de l'interaction entre ces cloques semble prometteuse.

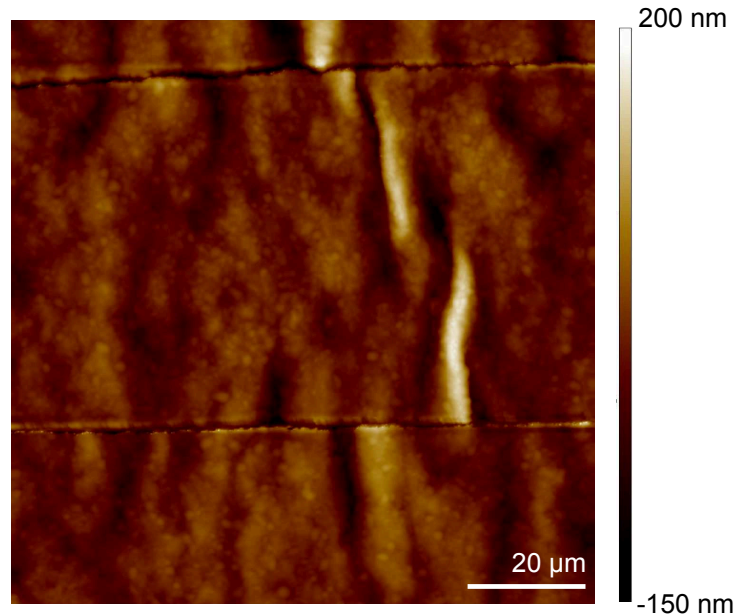


FIGURE 6.12: Deux cloques suffisamment proche interagissent en raison du déchargement du substrat dans une monocouche d'oxyde en compression.



Soft Janssen

Les fin d'après-midi chez MecaWet sont riches d'idées de manip diverses et variées (avec les chefs, les thésards, les visiteurs...). La plupart restent à l'état d'ébauche ou de démo de coin de table, d'autres vivent un peu plus longtemps mais n'ont pas (encore) abouti (machine à fabriquer des tirets sur du latex, sabrage de champagne ou snow roller de maïzena...). Exceptionnellement (grâce à la ténacité de Jérémy), certaines sont un peu plus finalisées.

Voici une méthode originale de mesures des contraintes dans une expérience classique de matériaux granulaires et son application au problème ouvert de la décharge d'un silo. Cette étude a été conduite avec Jérémy Hure et Thomas Cambau suite à une discussion initiale avec Guillaume Lagubeau.

Nous avons bénéficié de discussions avec Pierre Jop, Éric Clément et Jean-Christophe Géminard, du nouvel évangile des matériaux granulaires (Andreotti-Forterre-Pouliquen), du soutien matériel d'Évelyne Kolb et du soutien moral de Cesaria Evora. Le manuscrit a été soigneusement amendé par les chefs (Étienne Reyssat et José Bico) et Luis A. Pugnaloni.

Nous reproduisons ici une version de Cambau *et al.* (2013), le lecteur intéressé peut se référer au chapitre dédié à cette expérience dans la thèse de Thomas Cambau (2013).

Local stresses in the Janssen granular column

Thomas Cambau¹, Jérémy Hure¹, and Joël Marthelot^{1,2}

¹ PMMH, CNRS UMR 7636, UPMC & Univ. Paris Diderot,
ESPCI-ParisTech, 10 rue Vauquelin, 75231 Paris Cedex 05, France.

² SVI, CNRS UMR 125, Saint-Gobain, 39 Quai Lucien Lefranc, 93303 Aubervilliers Cedex, France.

We study experimentally the distribution of local stresses in a granular material confined inside a vertical cylinder. We use an image correlation technique to measure the displacement field of the container induced by the forces exerted by the grains on the inner wall. We describe an optimization procedure based on the linear theory of elastic shells to deduce the distribution of these forces from the measured displacement field. They correspond to the stress field of the granular material close to the container's inner wall. We first confirm the validity of Janssen's description for various experiments, including the influence of the beads diameter and the effect of an additional mass on top of the granular column. We then apply this method to determine the stress field during the gravity driven discharge of a silo through an aperture.

I. INTRODUCTION

The stress distribution in a granular material is a complex problem illustrated by two canonical experiments: the sandpile and the silo. In 1829, Huber-Burnand [1] noticed that an egg covered with several inches of sand was able to support a mass of iron weighing fifty-five pounds without breaking, prefiguring the studies of forces repartition in granular materials [2]. The importance of the construction history on stress distributions under sandpiles was then demonstrated [3]. In 1895, Janssen [4] quantified the saturation of the bottom pressure in a granular material confined in a vertical container. The so-called *Janssen's law* defines the typical pressure saturation length, accounting for friction of the grains on the container's wall.

The practical interest in avoiding the damage and collapse of silos [5, 6] has motivated numerous studies. More recently, the confined granular column has been extensively studied as the simplest experimental setup to test the influence of many parameters on the repartition of stresses in granular materials. The hypothesis of fully mobilized friction [7, 8], the effects of humidity [9] and the motion of the wall of the silo [10] have been assessed through careful experiments. Such experiments have been used as tests to validate continuous models of granular materials, as oriented stress linearity (OSL) [11, 12] or elastic [13–15] theories.

In all these studies on confined granular materials, stresses all along the container's wall were inferred from the measurement of the apparent mass at the bottom of the column. The total shear stress on the column was obtained directly by measuring the mass of the lateral wall [16]. Apart from numerical results [17], direct measurements of local stresses remain scarce. In a recent work, the local force network in a 2D silo was directly measured with photoelastic particles [18]. The conclusions from these experiments are puzzling, showing significant deviations from Janssen-like models. This clearly indicates

that direct measurements of stresses for static confined granular material are still needed.

We propose here a different method to directly measure the stresses at the wall by tracking the minute deformation of the silo. We follow an idea proposed by Janssen in his original paper: *it was the intention of the author to determine the side pressure of the corn directly in the experiments* by using a side lid pushed against the silo's walls. However in his experimental setup, he noticed that *accurate results could not be obtained* [4].

In addition to the static Janssen's law, the dynamics of confined granular material have also been studied extensively. The flow rate of the gravity driven discharge of a granular column in a silo is described by *Beverloo's law* [19]. Even though well verified experimentally [20], the physical meaning of this Beverloo's law, sometimes described as a consequence of Janssen's law [21], remains unclear. The recent measurements of the pressure profile in the outlet plane of a discharging silo have shown that the flow-rates are not controlled by the local stress conditions [16]. The local displacement field of the grains exhibits complex patterns, such as shear zones close to the wall [22, 23]. Diffusive-wave spectroscopy experiments show the existence of slow collective rearrangements in addition to fast grain collisions [24]. The friction mobilization at the silo's wall during the discharge must also be described to understand collapse events [25]. Measurements of local stresses in confined granular materials are thus also required to gain insight into the physics of Beverloo's law.

The paper is organized as follows. In Section II, we recover Janssen's law from mass measurement at the bottom of silos with different elastic moduli. For the given set of parameters used in this study, there is no dependence of the saturation mass with the mechanical properties of the container. This leads to an experimental setup to measure wall deformations and infer the stress distribution in the granular material close to the wall, detailed in Section III. The technique is validated against indirect

results for quasi-static experiments in Section IV-A. We finally use this method to gain insight into the evolution of local stresses distribution during the discharge of granular matter through an aperture.

II. JANSSEN'S LAW IN A SOFT CONTAINER

A. Material and setup

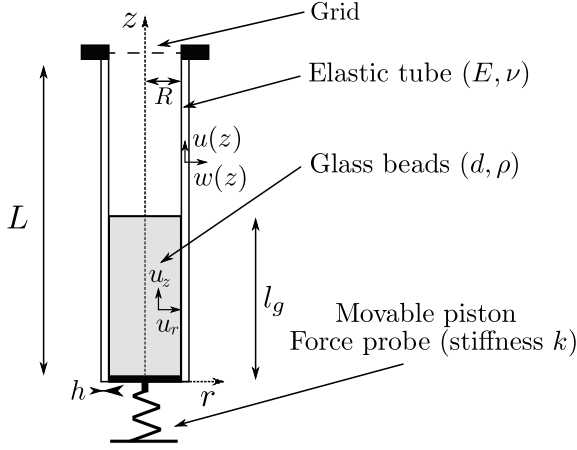


FIG. 1: Experimental setup. A tube (length L , radius R , thickness h , Young's modulus E and Poisson's ratio ν) clamped at its top is rain filled with glass beads (diameter d and density ρ), up to a height $z = l_g$. The bottom of the tube is closed by a piston connected to a force probe of stiffness k . The radius of the piston is slightly lower than R to prevent friction. The radial and longitudinal displacements of the granular material and the tube are noted $\{u_r, u_z\}$ and $\{u, w\}$, respectively.

Experiments were performed in elastomer cylindrical tubes and compared to a reference experiment in a rigid tube made of Poly(methyl methacrylate) (PMMA). We used silos of radius $R = 18$ mm, thickness $h = 2$ mm made of shore 8 (Young's modulus $E = 0.24$ MPa) and shore 32 ($E = 0.96$ MPa) PolyVinylSiloxane (PVS) or PMMA ($E = 2.5$ GPa). The tubes are clamped at the top and free to move at the bottom (Fig. 1). The granular material stands on a movable piston connected to a force probe to measure the apparent mass at the bottom of the silo. The grains are dry, non-cohesive and slightly polydisperse (10%) glass beads of diameter $d = 1.5$ mm (unless otherwise specified) and density $\rho = 2545$ kg.m⁻³. The PVS tubes are dusted with talc powder to prevent any adhesion between the grains and the wall of the silo. The static friction coefficient μ_s between the glass beads and the PMMA and PVS was measured using the sliding angle of a three-bead tripod. We found $\mu_s = 0.5 \pm 0.1$ for the PMMA tube, $\mu_s = 0.51 \pm 0.04$ (resp. $\mu_s = 0.52 \pm 0.03$) for the

shore 32 (resp. shore 8) PVS tube. In the following, the static friction coefficients are thus assumed to be the same in all experiments. The dynamic friction coefficient was measured with the same apparatus : once set into motion, the angle is slightly reduced until the three-bead tripod eventually stops. This leads to $\mu_d = 0.43 \pm 0.03$ for the shore 8 PVS tube. All the experiments were performed at room temperature and at a relative humidity of $35 \pm 5\%$ at least twice to ensure repeatability.

B. Saturation mass at the bottom of the silo.

A mass M_g of beads is poured through a 5 mm grid. Rain filling provides reproducible dense piling (with volume fraction $\phi \approx 64\%$). The piston is then moved downwards at constant speed $V = 1.5$ μm.s⁻¹, to mobilize the friction of the grains on the wall. The apparent mass is measured as a function of time (Inset Fig. 2) and decreases until it reaches a plateau, noted M_a , when the friction at the wall is at the Coulomb threshold as described in [12, 13]. We plot M_a as a function of the mass of beads filling the tube (Fig. 2). The apparent mass M_a increases with M_g until reaching a plateau noted M_{sat} .

At equilibrium, three forces resist the weight $-\rho\phi g\pi R^2 dz$ of a slice of height dz , where g is the gravitational acceleration. The upper part of the granular material applies a force $\sigma_{zz}(z + dz)\pi R^2$, the lower part $-\sigma_{zz}(z)\pi R^2$, and friction on the wall $\sigma_{rz}(z)2\pi R dz$, where σ_{rr} , σ_{zz} and σ_{rz} are average stresses in the grains on the radial direction. Assuming that the shear stress follows Coulomb law at the threshold, wall friction can be rewritten as $-\mu_s\sigma_{rr}(z)2\pi R dz$. Finally, Janssen assumed a constant redistribution of stresses $\sigma_{rr} = K\sigma_{zz}$, leading to the equilibrium equation $d\sigma_{zz}/dz - 2K\mu_s\sigma_{zz}/R = \rho\phi g$. The solution is :

$$\sigma_{zz} = -\frac{\rho\phi g R}{2K\mu_s} \left[1 - \exp\left(-\frac{2K\mu_s(z - l_g)}{R}\right) \right] \quad (1)$$

where $z = 0$ is the bottom of the tube. The apparent mass $M_a = [\pi R^2/g]|\sigma_{zz}(z = 0)|$ at the bottom of the tube is finally :

$$M_a = M_{sat} \left[1 - \exp\left(-\frac{M_g}{M_{sat}}\right) \right] \quad (2)$$

where $M_{sat} = (\pi R^3 \rho \phi / 2K\mu_s)$ is the measured saturation mass and $M_g = \pi R^2 l_g \rho \phi$ is the mass of grains filling the tube. Fitting the experimental data with Janssen's model (solid line Fig. 2), we find $M_{sat} = 39.8$ g, leading to $K = (\pi R^3 \rho \phi) / (2M_{sat}\mu_s) = 0.75$.

The evolution of the apparent mass as a function of the mass of beads filling the tube follows Janssen's law

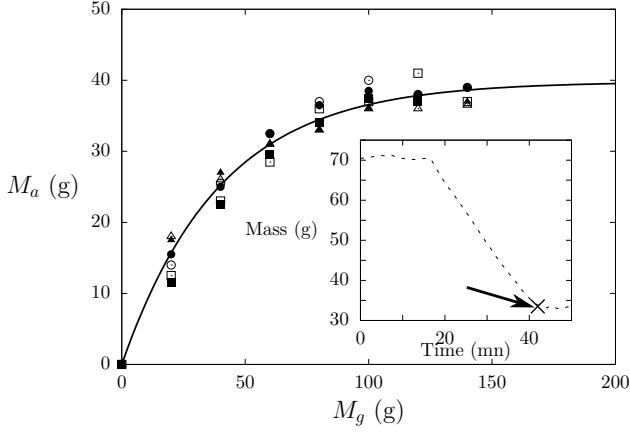


FIG. 2: Evolution of the apparent mass M_a as a function of the filling mass M_g . M_a was measured by the force probe at the bottom of the silo as in [12, 13]. Triangles, squares and circles respectively correspond to the PVS shore 8 ($E = 0.24$ MPa), PVS shore 32 (0.96 MPa) and PMMA (2.5 GPa) tubes. Each experiment was performed twice (open and filled symbols). The solid line corresponds to Janssen's model $M_a = M_{sat}[1 - \exp(-M_g/M_{sat})]$, with $M_{sat} = 40$ g best fitting the experimental data. Inset: Evolution of the measured mass as a function of time as the piston is lowered ($M_g = 80$ g in PVS shore 32). The cross represents the measured point M_a which corresponds to a fully mobilized friction and provides a single data point in the main graph.

and, for our experimental parameters, does not depend on the elasticity of the silo. Indeed, the only quantity that can be changed in Janssen's model accounting for the elasticity of the silo is the radius R resulting from the pressure of the grains on the tube. Therefore, in the limit of small deflections, $w/R \ll 1$, the stress distribution will not be affected. More quantitatively, the pressure applied on the wall scales as $|p| = \sigma_{rr} \sim \rho g R$. The radial displacement of an elastic tube subjected to this pressure can be written as $w \sim pR^2/Eh \sim \rho g R^3/Eh$ [26]. Thus the ratio w/R scales as $\rho g R^2/Eh$, which is less than 10^{-2} in our experiment. Previous studies have shown that the apparent mass is very sensitive to the compaction [11], thus the radial displacement of the tube has to be small enough not to change the initial compaction. This can be written as $w < d$, where d is the diameter of the glass beads.

Before describing the method to measure local stresses in the granular material, we compare these experimental results to the prediction of a model that assumes isotropic elasticity for the grains.

C. Isotropic elasticity model

Assuming isotropic elasticity for the granular material, with Young's modulus E_g and Poisson's ration ν_g , Ovar-

lez *et. al.* [14] showed numerically a strong dependence of the saturation mass with the ratio E_g/E . More quantitatively, we can follow the analytical description given in [14], adding the elasticity of the tube. Far from the free surface and from the piston, both stresses and strains of the granular material should be independent of the coordinate z . The non-zero terms of the strain tensor ϵ can be written as a function of the radial u_r and longitudinal u_z displacements:

$$\epsilon_{rr} = \frac{\partial u_r}{\partial r} \quad \epsilon_{\theta\theta} = \frac{u_r}{r} \quad \epsilon_{zz} = \frac{\partial u_z}{\partial z} \quad \epsilon_{rz} = \frac{1}{2} \frac{\partial u_z}{\partial r} \quad (3)$$

In this asymptotic regime, the equilibrium equations

$$\frac{\partial \sigma_{rr}}{\partial r} + \frac{\sigma_{rr} - \sigma_{\theta\theta}}{r} = 0 \quad \frac{\partial \sigma_{rz}}{\partial r} + \frac{\sigma_{rz}}{r} = \rho g \quad (4)$$

are solved by assuming Hooke's law for the granular material:

$$\epsilon_{\alpha\beta} = \frac{1 + \nu_g}{E_g} \sigma_{\alpha\beta} - \nu_g \delta_{\alpha\beta} \sigma_{\gamma\gamma} \quad (5)$$

where $(\alpha, \beta, \gamma) \in \{r, \theta, z\}$, and δ is the Kronecker symbol, and with the boundary conditions $\sigma_{rz}(r = R, z) = -\mu_s \sigma_{rr}(r = R, z)$ This yields the radial and longitudinal displacements:

$$u_r(r, z) = \frac{U_R}{R} r \quad (6a)$$

$$u_z(r, z) = \frac{1 + \nu_g}{2E_g} \rho g r^2 - z \left(\frac{(1 - 2\nu_g)(1 + \nu_g) \rho g R}{\nu_g E_g} + \frac{1}{\nu_g} \frac{U_R}{R} \right) \quad (6b)$$

with U_R the radial displacement of the tube. Setting U_R to 0 in Eqs. 6, we recover the displacements given in [14]. The displacement U_R is related to the pressure $p = -\sigma_{rr} = (\rho g R)/(2\mu_s)$ acting on the tube:

$$U_R = \frac{pR^2}{Eh} = \frac{\rho g R^3}{2\mu_s E h} \quad (7)$$

Finally, the saturation mass $M_{sat,elas} = (\pi R^2/g) |\sigma_{zz}|$ takes the form:

$$M_{sat,elas} = M_{sat} \left(1 + \frac{E_g}{(1 - \nu_g)E} \frac{R}{h} \right) \quad (8)$$

where M_{sat} is the saturation mass considering a rigid tube. Experimentally, we varied the ratio E_g/E by a factor 10^4 , and did not see any evidence of this dependence. The isotropic elasticity description is thus insufficient to describe confined granular material and we need to consider anisotropy or elliptic theories, as pointed out in [14]. Nevertheless, the stress distribution in the granular material appears to be the same inside a rigid or soft container, which leads to the method for measuring local stresses detailed in the next section.

III. EVALUATION OF LOCAL STRESSES

A. Experimental setup

The saturation of pressure with depth in a granular column is a consequence of friction of the granular material on the silo's inner wall. We propose to measure the resulting displacement field of the outer wall of the silo to reconstruct the stress field of the granular material close to the wall. Although difficult to estimate for industrial silos [6], we will show that such displacements may be obtained by using soft elastomer containers. As shown in Fig. 2, there is no perceptible effect of the elasticity of the silo in our experiments, we thus use the shore 8 tube in the following.

Quasi-static experiments – We use the procedure described in Section II.B. The PVS tubes are additionally sputtered with black paint, as shown on Fig. 3. Displacements were obtained by correlating a picture of the tube, taken as the apparent mass reaches the Janssen's plateau, with a reference picture of the empty tube [35]. The cross-correlation of the two pictures (PIVlab [27] with Matlab) leads to the displacement field $\{v(y, z), u(y, z)\}$ defined on Fig. 1 and Fig. 3. These displacement fields are finally converted into the radial and longitudinal components of the displacement $v(y, z) = (y/R)w(z)$ so that $w(z) = R dv(y, z)/dy$ and $u(z) = \langle u(y, z) \rangle_y$, respectively.

Discharge experiments – The piston is replaced by a fixed cylinder of radius $R_c = 17.75$ mm slightly smaller than the radius of the tube to avoid friction. A conical hole of minimal diameter $D = 11$ mm, maximal diameter $D = 22$ mm and angle 60° drilled into the cylinder is closed by a plug (see Inset Fig. 8). Once the tube is rain filled with grains, the plug is removed and the mass of grains flowing outside the tube is recorded as a function of time. The displacement field is obtained by performing the cross-correlation between a reference picture of the empty tube and pictures taken at a given time after releasing the plug. The displacement field $\{u(z), w(z)\}$ is obtained as in the quasi-static experiment.

A typical result of the image correlation is shown on Fig. 4(a,b). The tube is stretched axially as the grains pull on the wall. The radial displacement is positive in the filled region because of the pressure of the grains, and negative above because of Poisson's effect (the tube being clamped at the top). The radial and longitudinal displacements are direct consequences of the shear stress $\sigma_{rz}(R, z)$ and radial stress $\sigma_{rr}(R, z)$ inside the grains, close to the wall. In the following, we will note $\sigma_{rz}(R, z) = \sigma_{rz}(z)$ and $\sigma_{rr}(R, z) = \sigma_{rr}(z)$ to ease legibility, keeping in mind that these quantities are local and

not averaged like in the Janssen model. A refined Janssen model accounting for the radial dependence leads to the same qualitative behavior [28]. We recall in the next paragraph the linear theory of cylindrical elastic shells, which link the applied forces on the container's inner wall to the displacement field.

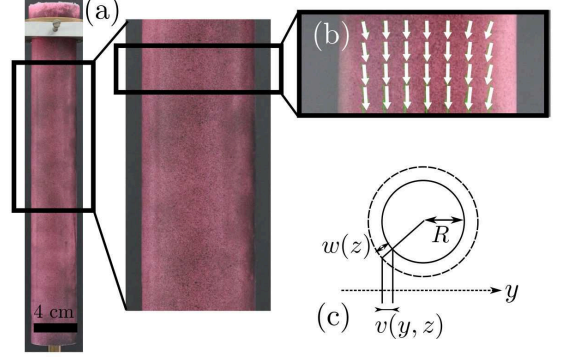


FIG. 3: (Color online) (a,b) The PVS tube is sputtered with black paint to measure the displacement field (arrows) using an image correlation technique (PIVlab [27] with Matlab). A reference picture is taken when the tube is empty. This image is then compared to another one obtained when the apparent mass saturates (quasi-static experiments), or at a given time Δt after the plug was removed (discharge experiments). (c) Image correlation gives both the longitudinal displacement $u(y, z)$ and the transverse displacement $v(y, z)$. The radial displacement can be obtained following $v(y, z) = (y/R)w(z)$.

B. A model for the deformation of the silo

1. Cylindrical shells equations

We use the linear theory of elastic cylindrical shells [26] to describe the deformation of the silo [36]. For axisymmetric deformations, the non-zero values of the strain ϵ and curvature κ tensors are written in terms of axial u and radial w displacement:

$$\epsilon_{zz} = \frac{du}{dz} \quad \epsilon_{\theta\theta} = \frac{w}{R} \quad \kappa_{zz} = -\frac{d^2w}{dz^2} \quad (9)$$

The moment $m_{\alpha\beta}$ and in-plane stress $n_{\alpha\beta}$ are given by Hooke's law:

$$m_{zz} = \frac{Eh^3}{12(1-\nu^2)} \kappa_{zz} \quad (10)$$

$$n_{zz} = \frac{Eh}{1-\nu^2} (\epsilon_{zz} + \nu\epsilon_{\theta\theta}) \quad (11)$$

$$n_{\theta\theta} = \frac{Eh}{1-\nu^2} (\epsilon_{\theta\theta} + \nu\epsilon_{zz}) \quad (12)$$

Finally, the in-plane and out-of-plane equilibrium equations are:

$$\frac{dn_{zz}}{dz} = -hf_v \quad (13)$$

$$\frac{d^2m_{zz}}{dz^2} - \frac{n_{\theta\theta}}{R} = -p \quad (14)$$

where p is the pressure acting on the interior face of the tube (positive towards the exterior) and f_v the axial volume force (positive upwards). In the case of a tube filled with granular materials, the pressure is given by $p = -\sigma_{rr}(z)$. Grains also apply a shear stress $-\sigma_{rz}(z)$ on the tube which can not be accounted for directly in shells equations. However, we can note that a shear force acting on a height dz of tube, $-\sigma_{rz}2\pi(R - h/2)dz$, is equivalent to an axial volume force $f_v h 2\pi R dz$, where $f_v h = -(1 - h/2R)\sigma_{rz}$.

For given functions $\sigma_{rr}(z)$ and $\sigma_{rz}(z)$, solving the equilibrium equations 13 and 14 with appropriate boundary conditions leads to the axial and radial displacements. We do not solve the equations over the entire length of the tube, as the upper part ($x > l_g$) deformation corresponds to the stretching of an empty shell [37], a state completely described by $u(x > l_g) = u_0(x/l_g)$ and $w(x > l_g) = w_0$. In the following, the boundary conditions considered are $u(l_g) = u_0$, $w(l_g) = w_0$, $w'(l_g) = 0$ and a free edge at the bottom, where $n_{zz}(0) = m_{zz}(0) = dm_{zz}/dz(0) = 0$. The values u_0 and w_0 are obtained experimentally.

We now describe the optimization procedure to solve the inverse problem, *i.e.* once knowing the displacement field, finding the shear stress and pressure in the granular material close to the wall.

2. Optimization procedure

The portion of the tube filled with grains, $0 \leq z \leq l_g$, is discretized into n elements. The values of the functions $\sigma_{rr}(z)$ and $\sigma_{rz}(z)$ at the nodes constitute the $2n$ unknowns of our inverse problem, and the values of the functions in each element are interpolated from these points. For a given set of unknowns, the boundary value problem (Eq. 13,14) is solved by a collocation method (Matlab's *bvp4c* solver) [29], leading to the displacement field $\{u, w\}$. The squared deviation of this field from the experimental measurement is then computed. The procedure is repeated by changing the values of the unknowns until the squared deviation is minimal, using Levenberg-Marquardt or Active-Set algorithms (Matlab's *lsqnonlin* [30] and *fmincon* [31] functions). The initial guess for the $2n$ unknowns is set to zero. We checked that the converged solution does not depend on the initial guess. A typical result of the optimization procedure is shown on Fig. 4.

There is a unique solution to the linear system of equations (6,7). Thus in principle, increasing n leads to better evaluations of the functions σ_{rz} and σ_{rr} . However, large values of n greatly increase computational cost, and are more likely to lead to local minima. Therefore, we use small values of n , and repeat the entire optimization procedure (typically a hundred times) for random location of the discretization nodes along the filled region of the tube. This allows to assess the values of the unknown functions everywhere along the tube in a computationally effective way. For each optimization procedure, the value of n is selected as the minimal value above which the unknown functions do not change (when increasing n only leads to noisy results).

IV. EXPERIMENTAL RESULTS

In the first part of this section, we measure the shear stress and pressure acting on the wall in the quasi-static experiments using the optimization procedure described in the previous section. As friction is expected to be fully mobilized, we can reduce the number of unknowns by considering $|\sigma_{rz}| = \mu|\sigma_{rr}|$, where μ is an additional unknown. Note that the optimization procedure has also been carried out for the quasi-static experiments without the hypothesis of fully mobilized friction, leading to identical results.

In a second part, we measure the evolution of stresses during discharge experiments. As the friction state is in this case unknown, we look at the values of the shear stress and pressure separately, assuming Coulomb friction law:

$$|\sigma_{rz}| \leq \mu|\sigma_{rr}| \quad (15)$$

where μ is taken as the static friction coefficient μ_s measured experimentally.

A. Local stresses in Janssen granular column.

1. Stress distribution as a function of height

We use the optimization procedure described above to evaluate the shear stress σ_{rz} at the wall, for different filling masses. The shear stress σ_{rz} increases with depth, from zero at the free surface to a saturation value (Fig. 5). The saturation length is of the order of the tube diameter, independant of the filling mass and in agreement with Janssen's law. The difference between the weight of the total column gM_g and the force on the wall $2\pi R \int_0^{l_g} \sigma_{rz} dz$ is in agreement with the bottom weight measurement gM_a . As expected, if the filling length l_g is smaller ($l_g < 60$ mm), stresses do not reach the saturation value. We obtained a friction coefficient $\mu = 0.46 \pm 0.04$, consistent with the static friction coefficient measured independantly.

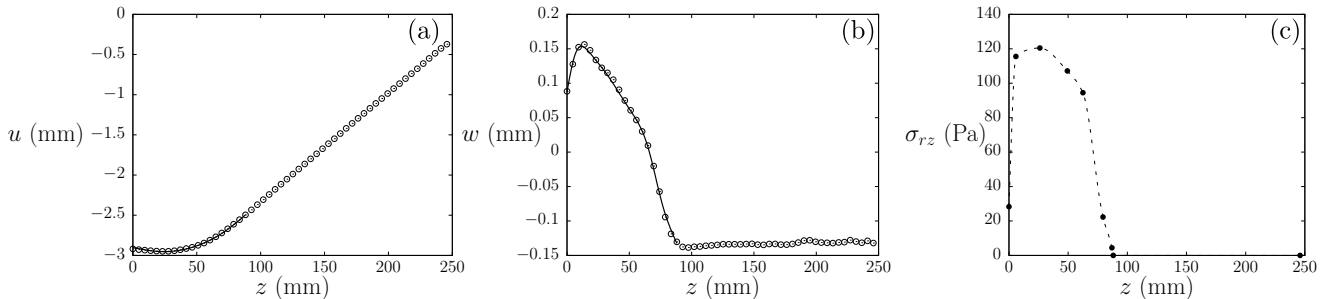


FIG. 4: Quasi-static experiment: Typical results for a shore 8 tube ($E = 0.24$ MPa, $\nu = 0.5$) and a filling mass $M_g = 140$ g ($l_g = 80$ mm). $z = 0$ corresponds to the bottom of the tube, $z = l_g$ corresponds to the free surface of the granular column. (a,b) Longitudinal and radial displacements along the tube. The circles correspond to measurements obtained by image correlation, the solid line corresponds to the result of the optimization procedure. The computation was only done in the part of the tube filled with grains, with appropriate boundary conditions to describe the empty part. (c) Shear stress in the granular material at the wall: the minimisation algorithm finds the values of the shear stress best fitting both experimental displacement curves. Shear stress is interpolated using cubic spline between the $n=8$ evaluation points (black dots).

The saturation value of the stresses can be compared to theoretical predictions. Assuming a non-cohesive material, equality of internal and beads/wall friction angles, and a Mohr-Coulomb criterion, the stress ratio at the wall can be written as [28]:

$$\lambda_w = \sigma_{rr}/\sigma_{zz} = 1/(1 + 2\mu_s^2) \quad (16)$$

with $\sigma_{zz} = gM_a/\pi R^2$. This leads to $\sigma_{rr} \approx 280$ Pa, in excellent agreement with the measured value $\sigma_{rr} = \sigma_{rz}/\mu \approx 282$ Pa. The experimental results shown on Fig. 5 are in very good agreement with an exponential saturation behavior and Eq. 16 [38]. Measuring locally the stresses all along the granular column thus directly confirms the Janssen description, *i.e.* the exponential saturation of the stresses (Eq. 1), while previous studies inferred the validity of the model from the evolution of the apparent mass at the bottom of the column $M_a(M_g)$ (Eq. 2).

2. Influence of beads diameter

We measure the stress field for the same filling length and three different bead diameters (Fig. 6). We do not see any influence of bead diameter on the distribution of local stresses, as expected in the limit $d \ll R$ [32, 33] for quasi-static experiments. One can note that, near the piston ($z \in [0 - 10]$ mm), the stresses are slightly smaller than the saturation value, due to the boundary effect, as it was reported numerically [14].

3. Effect of an overload

Adding a weight on top of a granular media does not change the forces at the bottom of the pile as noted

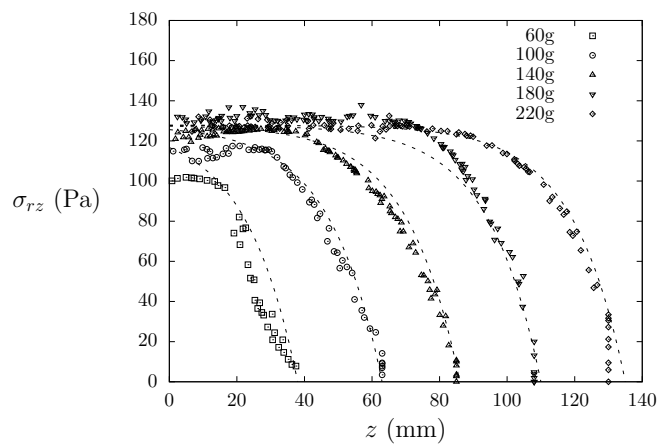


FIG. 5: Quasi-static experiment: Shear stress σ_{rz} along the tube for different filling masses $M_g = 60$ g (squares), 100 g (circles), 140 g (triangles), 180 g (inverted triangles), 220 g (diamonds). σ_{rz} saturates from top $z = l_g$ to bottom $z = 0$. For a given experiment, the optimization procedure is repeated a hundred times with $n = 5$ estimation points of the shear stress. Dashed lines correspond to a fit of the experimental data by the function $f(z) = [\mu_s/(1 + 2\mu_s^2)][gM_a/\pi R^2][1 - \exp(K_w(z - l_g)/R)]$ (Eq. 16), with $K_w = 1.16$.

by Huber-Burnand. This effect was studied quantitatively in the Janssen column [13, 18] where the additional weight is redistributed by friction to the wall. A steel cylinder of radius slightly smaller than the radius of the tube and mass $M_{ov} = 60$ g is added on top of a granular column of mass $M_g = 140$ g previously fully mobilized. Once the overload is added, the piston is slightly moved downwards until reaching saturation again. The stress distribution with and without the overload are plotted in Fig. 7. The shear stress σ_{rz} is maximum at the top of the column and decreases with depth to the same value than without the overload. The additional shear stress

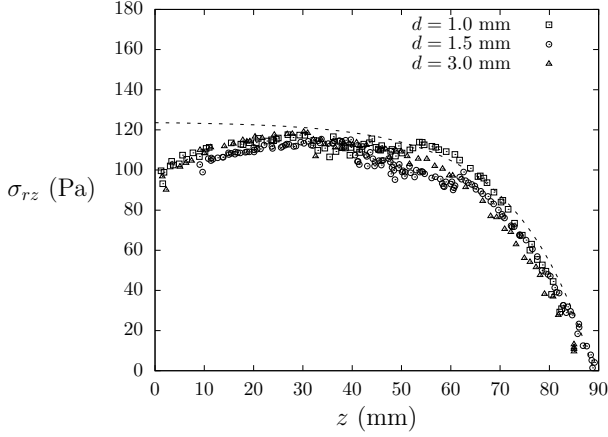


FIG. 6: Quasi-static experiment: Shear stress σ_{rz} along the tube ($M_g = 140$ g) with three different bead diameters ($d = 1$ mm, 1.5 mm or 3 mm). The optimization procedure is repeated a hundred times for each experiment with $n = 5$ estimation points of the shear stress. The dashed line corresponds to a fit of the experimental data by the function $f(z) = [\mu_s/(1 + 2\mu_s^2)][gM_a/\pi R^2][1 - \exp(K_w(z - l_g)/R)]$ (Eq. 16), with $K_w = 1.16$.

at the wall, plotted in dashed line, decreases from the free surface to the bottom of the granular column. Most of the weight of the overload is screened after a typical distance of the order of the tube diameter, which is again consistent with Janssen's description.

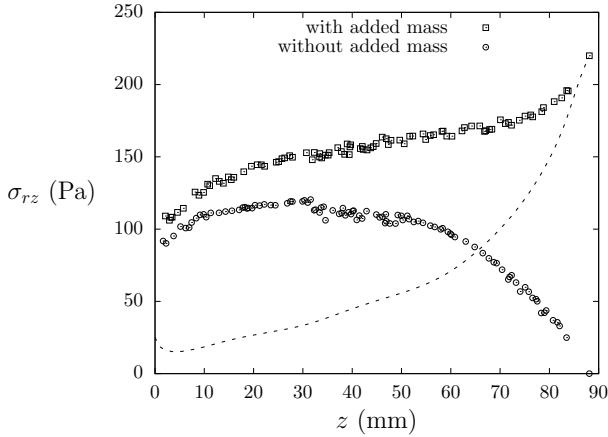


FIG. 7: Quasi-static experiment: Shear stress σ_{rz} along the tube for $M_g = 140$ g. Circles corresponds to the reference experiment, squares to the same experiment with an overload of $M_{ov} = 60$ g. The dashed line shows the difference between the two curves.

The stress distributions in the quasi-static experiments confirm the validity of Janssen's description for confined granular materials. They complement another experimental study of the evolution of stresses in a 2D silo

with photoelastic beads [18]. The fluctuations reported in such experiments, showing force networks in the silo, are in our case averaged close to the wall by the size of the cross-correlation windows between two pictures. However, the mean-field approach we developed could be applied to higher resolution pictures on smaller areas of the tube to track local fluctuations of stresses in the granular material at the wall. The maximum resolution would be limited by the size of the cross-correlation window which depends on the typical scale of the sputtering pattern, but also by the elasticity of the tube which imposes a typical scale of the order of the thickness.

B. Local stresses during a discharge

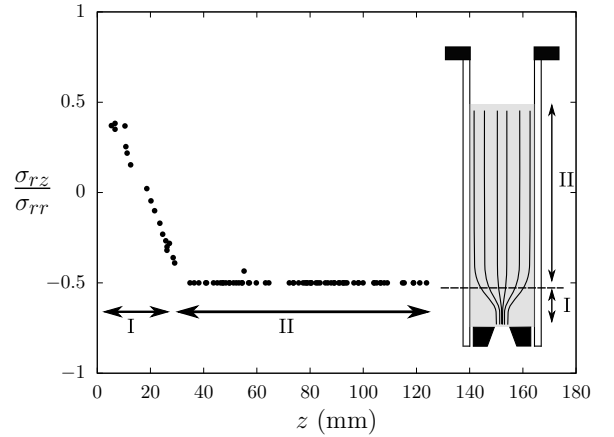


FIG. 8: Discharge experiment: Stress ratio $\mu = \sigma_{rz}/\sigma_{rr}$ along the tube at $\Delta t = 0.2$ s after the release of the plug. The grains move downwards at the wall (region II) except close to the bottom where there is no relative motion of the grains with the wall (region I). Inset : The streamlines go towards the interior of the tube [16].

We use the same technique to determine the stress field along the silo during a gravity driven discharge. The flow rate is found to be constant ($Q = 22 \text{ g.s}^{-1}$) in agreement with Beverloo's law. In this experiment, after rain filling the silo, we do not mobilize friction, as in the quasi-static experiment, but directly remove the plug. In this case, the friction state is unknown and we evaluate the shear stresses and wall pressure separately. At the top, the tube is clamped and at the bottom the tube is free to move while the drilled cylinder in the outlet plane is fixed (Inset Fig. 8). We measure the displacement field as a function of time and apply the optimization method to a subset of two images : the reference image when the tube is empty and another at a given time Δt after the plug was removed. We obtain independently the shear stress σ_{rz} and wall pressure σ_{rr} along the granular column for each time.

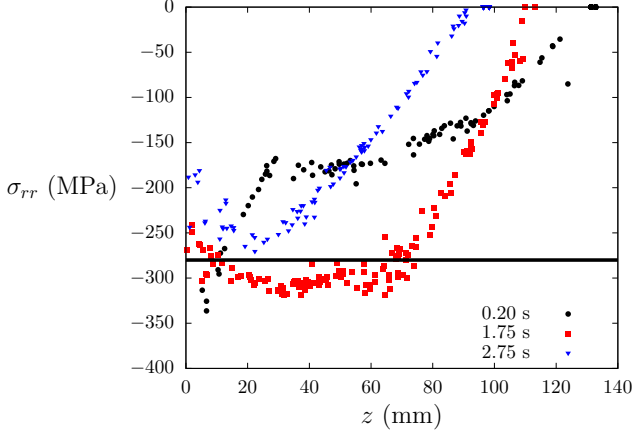


FIG. 9: (Color online) Discharge experiment: Evolution of the radial stress σ_{rr} along the tube during discharge for $M_a = 220$ g. Each curve corresponds to a different time after the release of the plug, $\Delta t = 0.2$ s (black circles), 1.75 s (red squares), 2.75 s (blue inversed triangles). The horizontal solid line indicates the value of the saturation for quasi-static experiments.

As the friction is not mobilized before the discharge, we first need to measure the stress ratio σ_{rz}/σ_{rr} along the tube. This ratio is plotted just after the plug is removed (Fig. 8 for $\Delta t = 0.2$ s). In an upper region $z \in [30 - 120]$ mm (region II), the grains slide downwards at the wall ($\sigma_{rz}/\sigma_{rr} = -\mu$ (Eq. 15)), while in the lower region $z \in [0 - 30]$ mm (region I), there is no relative motion of the grains on the silo's wall. As the bottom part of the tube is not yet moving at this time, this indicates that the grains stand on the fixed cylinder in a still region, which is consistent with the observations of previous discharge experiments [16]: the streamlines go towards the center of the granular column close to the outlet plane (as sketched in the Inset Fig. 8). The length of the region I is of the order of the tube radius. A displacement of a few grains diameters ($h = (Q\Delta t)/(\rho\phi S) \approx 10$ mm) is enough to mobilize friction on the whole column. At larger time ($\Delta t > 1$ s), as the tube and the grains move simultaneously, the stress ratio is more difficult to interpret.

The radial stress along the tube $\sigma_{rr}(z)$ is plotted on Fig. 9. At short time ($\Delta t = 0.2$ s), only a part of the grain mass is screened by the friction at the wall, and the pressure $p = -\sigma_{rr}$ saturates at a lower value than the one observed in the quasi-static experiment. Close to the fixed cylinder at the bottom ($z \in [0 - 30]$ mm), grains can not slide on the wall, and the pressure increases. At larger times, the friction is fully mobilized along the tube and we recover a profile characteristic of Janssen's saturation as in the quasi-static experiment, including the pressure decrease at the bottom, due to a boundary effect. For $\Delta t = 1.75$ s, the pressure $p = -\sigma_{rr}$ increases exponentially along the tube and saturates at the value

obtained in the quasi-static experiment. This description remains valid during the rest of the discharge, as the free surface of the granular column moves downwards. At $\Delta t = 2.75$ s, the grain mass in the column decreases significantly and the saturating pressure is therefore smaller.

The evolution of the radial stress at two different fixed positions along the tube ($z=60$ mm and 90 mm) is plotted on Fig. 10. The pressure acting on the wall starts to increase as $p = -\sigma_{rr}$ until reaching the saturation value $|\sigma_{rr}| \approx 280$ Pa, obtained in the quasi-static experiments. It then decreases to zero while the tube is discharging. More precisely, if we assume that the pressure profile follows Janssen's law, with $K_w = 1.16$ as in the quasi-static experiments (Fig. 5), we can compute the evolution of the pressure at a given point along the tube :

$$\sigma_{rr}(z, t) = -\frac{\rho\phi g R}{2\mu_s} \left[1 - \exp\left(\frac{K_w}{R}(z - l_g(t))\right) \right] \quad (17)$$

with $l_g(t) = l_g(t=0) - (Qt)/(\pi R^2 \rho\phi)$. The experimental measurements are in good agreement with this description (solid and dashed lines on Fig. 10) for $\Delta t \geq 0.75$ s, typical time after which friction is fully mobilized. For $\Delta t < 0.75$ s, the Janssen's description is not relevant as the friction is undetermined. The typical timescale for full mobilization should depend on the radius of the tube and on the outlet diameter and is found to be very short in our experiments.

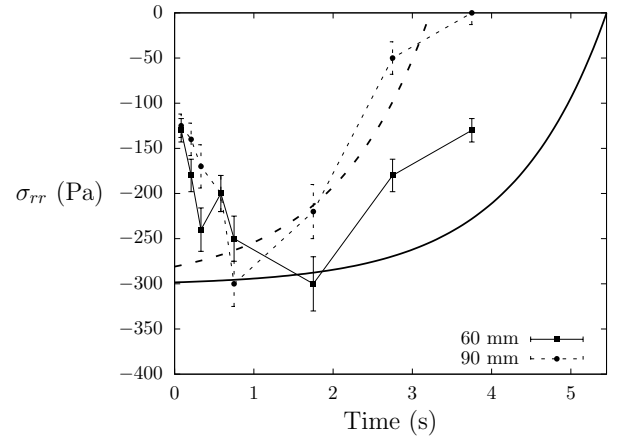


FIG. 10: Discharge experiment: Evolution of the radial stress σ_{rr} in the granular material close to the wall in time at two fixed position on the tube, $z = 60$ mm (squares) and $z = 90$ mm (circles). As $p = -\sigma_{rr}$, the pressure increases, reaches the saturation value corresponding to the full mobilization of friction and decreases during the discharge of the silo. The errorbars are given by the scatter of the numerical results. The solid and dashed lines correspond to the assumption that the pressure profile along the tube during all the discharge follows Janssen's law with $K_w = 1.16$ obtained in the quasi-static experiments (Fig. 5).

These experimental measurements of the stresses in a granular material during a gravity driven discharge show

that soon after the beginning of the discharge, the stress profile close to the container's wall follows Janssen's law (except close to the outlet plane) almost until the end of the discharge.

V. CONCLUSION

The stress repartition in a confined granular column is classically inferred from the saturation of the apparent mass at the bottom of the silo. We measured the apparent mass as a function of filling mass in soft elastomer containers after full mobilisation of friction and recovered a unique profile described by Janssen's theory. We show that this experimental evidence is not compatible with an isotropic elasticity description for a granular column.

We developed an experimental technique to measure the local stress field at the wall of a granular material confined in a vertical container. We validated this method against indirect measurement of the stress distribution in a granular column in a quasi-static experiment. The local stress distribution is found to be in agreement with Janssen's law. The beads diameter was found to have no influence on the stress profiles. The local distribution of additional stresses in the presence

of an overload was determined.

Inferring local informations in a granular material from the resulting displacements of the container is a new method which could be used in a wide range of granular problems, to measure stresses under sandpiles, to track local stresses fluctuations in a granular column, or to evaluate the stress distribution in a Couette granular experiment. It could naturally be extended to study complex fluids rheology. The method developed could be applied to study other mechanical problems, as for example plant growth under constraints [34].

We measured the evolution of stresses in time for gravity driven discharge experiments. We found that, starting from an unknown friction state, a displacement of a few grain diameters is enough to mobilize friction on the whole column. After a short transient the pressure is found to be the same as the one observed in the quasi-static experiment. Eventually, we showed that the stress evolution in time is well described assuming Janssen's exponential saturation and Beverloo's constant mass flow rate.

Acknowledgements We thank E. Kolb for the lend of experimental devices, G. Lagubeau for initial discussion, J. Bico, P. Jop, E. Reyssat and L. Pugnali for careful proofreading of the draft.

-
- [1] Huber-Burnand, Ann. d. Phys. **92**, 316 (1829).
 - [2] J. Smid and J. Novosad, Proc. Powtech. Conference. Int. Chem. Eng. Symp. **63**, 1 (1981).
 - [3] L. Vanel, D. Howell, D. Clark, R. P. Behringer, and E. Clément, Phys. Rev. E **60**, 5040 (1999).
 - [4] M. Sperl, Granular Matter **8**, 59 (2006).
 - [5] A. Dogangun, Z. Karaca, A. Durmus, and H. Sezen, J. Perform. Constr. Fac. **23**, 65 (2009).
 - [6] Z. Zhong, J. Ooi, and J. Rotter, Eng. Struct. **23**, 756 (2001).
 - [7] P. Evesque and P.-G. de Gennes, C. R. Acad. Sci. Paris **326**, 761 (1998).
 - [8] P. G. de Gennes, Rev. Mod. Phys. **71**, 374 (1999).
 - [9] Y. Bertho, T. Brunet, F. Giorgiutti-Dauphiné, and J.-P. Hulin, Europhys. Lett. **67**, 955 (2004).
 - [10] Y. Bertho, F. Giorgiutti-Dauphiné, and J.-P. Hulin, Phys. Rev. Lett. **90**, 144301 (2003).
 - [11] L. Vanel and E. Clément, Eur. Phys. J. B **11**, 525 (1999).
 - [12] L. Vanel, P. Claudin, J.-P. Bouchaud, M. Cates, E. Clément, and J. Wittmer, Phys. Rev. Lett. **84**, 1439 (2000).
 - [13] G. Ovarlez, C. Fond, and E. Clément, Phys. Rev. E **67**, 060302 (2003).
 - [14] G. Ovarlez and E. Clément, Eur. Phys. J. E **16**, 421 (2005).
 - [15] C. Goldenberg and I. Goldhirsch, Nature **435**, 188 (2005).
 - [16] C. Perge, M. Aguirre, P. Gago, L. Pugnali, D. Le Tourneau, and J.-C. Géminard, Phys. Rev. E **85**, 021303 (2012).
 - [17] J. Landry, G. Grest, L. Silbert, and S. Plimpton, Phys. Rev. E **67**, 041303 (2003).
 - [18] J. F. Wambaugh, R. R. Hartley, and R. P. Behringer, Eur. Phys. J. E **32**, 134 (2010).
 - [19] W. A. Beverloo, H. A. Leniger, and J. Van de Velde, J. Chem. Eng. Sci. **15**, 260 (1961).
 - [20] C. Mankoc, A. Janda, R. Arévalo, J. Pastor, I. Zuriguel, A. Garcimartin, and D. Maza, Granular Matter **9**, 407 (2007).
 - [21] B. Andréotti, Y. Forterre, and O. Pouliquen, *Les milieux granulaires: entre fluide et solide* (EDP Sciences/CNRS Edition, Paris, 2011).
 - [22] O. Pouliquen and R. Gutfraind, Phys. Rev. E **53**, 552 (1996).
 - [23] G. MiDi, Eur. Phys. J. E **14**, 341 (2004).
 - [24] N. Menon and D. J. Durian, Science **275**, 1920 (1997).
 - [25] G. Gutiérrez, P. Boltenhagen, J. Lanuza, and E. Clément, in *Traffic and granular flow 07*, Eds. Appert-Rolland, C., Chevoir, F., Gondret, P., Lassarre, S., Lebacque, J., Schreckenberg, M. (Springer, Berlin, 2009) pp. 517–523.
 - [26] S. Timoshenko and S. S. Woinowsky-Krieger, *Theory of Plates and Shells* (McGraw-Hill, New York, 1964).
 - [27] W. Thielicke and E. Stamhuis, *PIVlab - Time-Resolved*

- Digital Particle Image Velocimetry Tool for MATLAB*, <http://pivlab.blogspot.fr/>.
- [28] J. Rahmoun, G. Millet, and G. de Saxcé, *J. Stat. Mech.* **P06011**, 1742 (2008).
 - [29] J. Kierzenka and L. Shampine, *ACM Trans. Math. Soft.* **27**, 299 (2001).
 - [30] K. Levenberg, *Quarterly Applied Math.* **2**, 164 (1944).
 - [31] R. Waltz, J. Morales, J. Nocedal, and D. Orban, *Mathematical Programming* **107**, 391 (2006).
 - [32] I. Bratberg, K. Maloy, and A. Hansen, *Eur. Phys. J. E* **18**, 245 (2005).
 - [33] A. Qadir, H. Guo, X. Liang, Q. Shi, and G. Sun, *Eur. Phys. J. E* **31**, 311 (2010).
 - [34] E. Kolb, C. Hartmann, and P. Genet, *Plant and Soil* **360**, 19 (2012).
 - [35] Pictures were taken using a Nikon D200 SLR camera, with a resolution of 4288x2848 pixels. A pixel size is about 0.05 mm
 - [36] In the thin shell limit $h/R \ll 1$, and for axisymmetric deformations, the non-linear term in axial strain $(dw/dx)^2$ can be neglected in the limit $u/L \gg (w/L)^2$, which is the case in our experiments
 - [37] Except close to the upper clamped boundary.
 - [38] Eq. 1 can not be used directly for comparison to our results shown in Fig. 5 and 6, as stresses in the Janssen's model are averaged along the radial direction. We thus used the exponential behavior with a parameter K_w , and Eq. 16 to fit our experimental results.

Bibliographie

- ALLAIN, C. & LIMAT, L. 1995 Regular patterns of cracks formed by directional drying of a colloidal suspension. *Physical review letters* **74** (15), 2981.
- AMESTOY, M. & LEBLOND, J.B. 1992 Crack paths in plane situationsâii. detailed form of the expansion of the stress intensity factors. *International Journal of Solids and Structures* **29** (4), 465–501.
- ATKINSON, A. & GUPPY, R.M. 1991 Mechanical stability of sol-gel films. *Journal of materials science* **26** (14), 3869–3873.
- AUDOLY, B. 2000a Asymptotic study of the interfacial crack with friction. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* **48** (9), 1851–1864.
- AUDOLY, B. 2000b Elasticité et géométrie. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie.
- AUDOLY, B., REIS, P. M. & ROMAN, B. 2005 Cracks in thin sheets : When geometry rules the fracture path. *Phys. Rev. Lett.* **95**, 025502.
- BALDELLI, A.A.L. 2013 On fracture of thin films : a variational approach. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie.
- BALDELLI, A.A.L., BOURDIN, B., MARIGO, J.J. & MAURINI, C. 2013 Fracture and debonding of a thin film on a stiff substrate : analytical and numerical solutions of a one-dimensional variational model. *Continuum Mechanics and Thermodynamics* pp. 1–26.
- BANK-SILLS, L., TRAVITZKY, N., ASHKENAZI, D. & ELIASI, R. 1999 A methodology for measuring interface fracture properties of composite materials. *International Journal of Fracture* **99** (3), 143–161.
- BARTHÉLEMY, M. & FLAMMINI, A. 2008 Modeling urban street patterns. *Phys. Rev. Lett.* **100**, 138702.
- BEUTH, J.L. 1992 Cracking of thin bonded films in residual tension. *Int. J. Solids Structures* **29**, 1657–1675.
- BOHN, S., DOUADY, S. & COUDER, Y. 2005 Four sided domains in hierarchical space dividing patterns. *Phys. Rev. Lett* **94** (5), 054503.

- BOUCHBINDER, E., FINEBERG, J. & MARDER, M. 2010 Dynamics of simple cracks. *Annu. Rev. Condens. Matter Phys.* **1** (1), 371–395.
- BOURDIN, B., FRANCFORT, G.A. & MARIGO, J.J. 2008 The variational approach to fracture. *Journal of Elasticity* **91** (1-3), 5–148.
- BOWDEN, N., BRITTAIN, S., EVANS, A.G., HUTCHINSON, J.W. & WHITESIDES, G.M. 1998 Spontaneous formation of ordered structures in thin films of metals supported on an elastomeric polymer. *Nature* **393** (6681), 146–149.
- BOZZINI, B., BONIARDI, M., GIANONCELLI, A., KAULICH, B., MELE, C., PRASCIOLU, M., SCARSELLI, G. & KISKINOVA, M. 2012 Cracking of nanofilm-based devices for electrochemical energetics. *Proc. of Crack Paths (CP 2012)*, Gaeta, Italy pp. 595–602.
- BRAU, F., DAMMAN, P., DIAMANT, H. & WITTEN, T.A. 2013 Wrinkle to fold transition : influence of the substrate response. *Soft Matter* **9** (34), 8177–8186.
- BRAU, F., VANDEPARRE, H., SABBAB, A., POULARD, C., BOUDAUD, A. & DAMMAN, P. 2010 Multiple-length-scale elastic instability mimics parametric resonance of nonlinear oscillators. *Nature Physics* **7** (1), 56–60.
- BRINKER, C.J. & SCHERER, G.W. 1990 *Sol-gel science : the physics and chemistry of sol-gel processing*. Academic Press.
- BURSÍKOVÁ, V., SLÁDEK, P., STÁHEL, P. & BURSÍK, J. 2006 Complex study of mechanical properties of a-si :h and a-sic :h boron doped films. *Journal of Non-Crystalline Solids* **352**, 1238–1241.
- CAMBAU, T. 2013 Montée capillaire, tube et grains. PhD thesis, Université Paris-Diderot-Paris VII.
- CAMBAU, T., HURE, J. & MARTHELOT, J. 2013 Local stresses in the janssen granular column. *Physical Review E* **88** (2), 022204.
- CHAI, Y.S. & LIECHTI, K.M. 1992 Asymmetric shielding in interfacial fracture under in-plane shear. *J Appl Mech* **59** (2), 295–304.
- CHAMBOLLE, A., FRANCFORT, G.A. & MARIGO, J.-J. 2009 When and how do cracks propagate? *J. Mech. Phys. Solids* **57**, 1614–1622.
- CHATEAU, D. & GÉMINARD, J.C. 2013 Fracture path in an anisotropic material in the light of a friction experiment. *Physical Review E* **88** (3), 033202.
- CHEN, J. & BULL, S.J. 2007 Indentation fracture and toughness assessment for thin optical coatings on glass. *Journal of Physics D : Applied Physics* **40** (18), 5401.

- COUDER, Y., PAUCHARD, L., ALLAIN, C., ADDA-BEDIA, M. & DOUADY, S. 2002 The leaf venation as formed in a tensorial field. *The European Physical Journal B* **28** (2), 135–138.
- COX, H.L. 1952 The elasticity and strength of paper and other fibrous materials. *British journal of applied physics* **3** (3), 72.
- DE FOCATIIS, D.S.A. & GUBLER, L. 2013 Uniaxial deformation and orientation of ethylene–tetrafluoroethylene films. *Polymer Testing* **32** (8), 1423–1435.
- DEGRAFF, J.M. & AYDIN, A. 1987 Surface morphology of columnar joints and its significance to mechanics and direction of joint growth. *Geological Society of America Bulletin* **99** (5), 605–617.
- DOERNER, M.F. & NIX, W.D. 1988 Stresses and deformation processes in thin films on substrates. *Critical Reviews in Solid State and Material Sciences* **14** (3), 225–268.
- ERDOGAN, F. & SIH, G.C. 1963 On the crack extension in plates under plane loading and transverse shear. *Journal of basic engineering* **85**, 519.
- EVANS, A.G. & HUTCHINSON, J.W. 1989 Effects of non-planarity on the mixed mode fracture resistance of bimaterial interfaces. *Acta Metallurgica* **37** (3), 909–916.
- FAOU, J.Y., PARRY, G., GRACHEV, S. & BARTHEL, E. 2012 How does adhesion induce the formation of telephone cord buckles? *Physical Review Letters* **108** (11), 116102.
- FRANK, S., GRUBER, P.A., HANDGE, U.A. & SPOLENAK, R. 2011 In situ studies on the cohesive properties of α and β ta layers on polyimide substrates. *Acta Materialia* **59** (15), 5881–5892.
- FRANK, S., HANDGE, U.A., OLLIGES, S. & SPOLENAK, R. 2009 The relationship between thin film fragmentation and buckle formation : Synchrotron-based in situ studies and two-dimensional stress analysis. *Acta Materialia* **57** (5), 1442–1453.
- FRAUNHOFER, J. 1817 Versuche über die ursachen des anlaufens und matt-werdens des glases und die mittel demselben zuvor zu kommen. *Gesammelte schriften, Munchen* .
- GAUTHIER, G., LAZARUS, V. & PAUCHARD, L. 2007 Alternating crack propagation during directional drying. *Langmuir* **23** (9), 4715–4718.
- GOEHRING, L., MAHADEVAN, L. & MORRIS, S.W. 2009 Nonequilibrium scale selection mechanism for columnar jointing. *Proceedings of the National Academy of Sciences* **106** (2), 387–392.

- GOLDSTEIN, R.V. & SALGANIK, R.L. 1974 Brittle fracture of solids with arbitrary cracks. *International Journal of Fracture* **10** (4), 507–523.
- GRIFFITH, A.A. 1921 The phenomena of rupture and flow in solids. *Philosophical transactions of the royal society of london. Series A, containing papers of a mathematical or physical character* **221**, 163–198.
- HAKIM, V. & KARMA, A. 2005 Crack path prediction in anisotropic brittle materials. *Physical review letters* **95** (23), 235501.
- HAMM, E., REIS, P.M., LEBLANC, M., ROMAN, B. & CERDA, E. 2008 Tearing as a test for mechanical characterization of thin adhesive films. *Nature Materials* **7**, 386–390.
- HANDGE, U.A., LETERRIER, Y., ROCHAT, G., SOKOLOV, I.M. & BLUMEN, A. 2000 Two scaling domains in multiple cracking phenomena. *Physical Review E* **62** (6), 7807.
- HAUKSBEE, F. 1712 An account of some farther experiments touching the ascent of water between two glass planes in an hyperbolick curve. *Philosophical Transactions* **28** (337), 153–154.
- HE, M.Y. & HUTCHINSON, J.W. 1988 *Kinking of a crack out of an interface*. Harvard University, Division of Applied Sciences.
- HE, M.Y. & HUTCHINSON, J.W. 1989 Crack deflection at an interface between dissimilar elastic materials. *International Journal of Solids and Structures* **25** (9), 1053–1067.
- HU, M.S. & EVANS, A.G. 1989 The cracking and decohesion of thin films on ductile substrates. *Acta Metallurgica* **37** (3), 917–925.
- HURE, J. 2012 Adhésion, délamination et compaction de plaques minces. PhD thesis, Université Paris-Diderot-Paris VII.
- HUTCHINSON, J.W. & SUO, Z. 1992 Mixed mode cracking in layered materials. *Advances in Applied Mechanics* **29**, 63–191.
- IRWIN, G.R. 1958 *Fracture, handbook der physik*. Springer (Vienna).
- JENSEN, H.M., HUTCHINSON, J.W. & KIM, K.S. 1990 Decohesion of a cut prestressed film on a substrate. *Int. J. Solid Structures* **26** (9), 1099–1114.
- JIANG, T., HUANG, R. & ZHU, Y. 2013 Interfacial sliding and buckling of monolayer graphene on a stretchable substrate. *Advanced Functional Materials* .

- KELLER, R.R., PHELPS, J.M. & READ, D.T. 1996 Tensile and fracture behavior of free-standing copper films. *Materials Science and Engineering : A* **214** (1), 42–52.
- KOLB, E., CLEMENT, E., BEAUVOIS, C., HANDGE, U., SOKOLOV, I. & BLUMEN, A. 2002 Fragmentation d’une couche de peinture déposée sur un substrat élastomérique. In *Journées internationales francophones de tribologie*, pp. 190–198.
- KRAVCHENKO, G.A. 2008 Crack patterns in thin films and x-ray optics thermal deformations .
- LAZARUS, V. & PAUCHARD, L. 2011 From craquelures to spiral crack patterns. *Soft Matter* **7**, 2552.
- LEBENTAL, M. 2007 Chaos quantique et micro-lasers organiques. PhD thesis, École Normale Supérieure de Cachan.
- LEBLOND, J.B. 1989 Crack paths in plane situations : general form of the expansion of the stress intensity factors. *International Journal of Solids and Structures* **25** (11), 1311–1325.
- LETERRIER, Y., ANDERSONS, J., PITTON, Y. & MÅNSEN, J.A. 1997*a* Adhesion of silicon oxide layers on poly (ethylene terephthalate). ii : Effect of coating thickness on adhesive and cohesive strengths. *Journal of Polymer Science Part B : Polymer Physics* **35** (9), 1463–1472.
- LETERRIER, Y., BOUGH, L., ANDERSONS, J. & MÅNSEN, J.A. 1997*b* Adhesion of silicon oxide layers on poly (ethylene terephthalate). i : Effect of substrate properties on coating’s fragmentation process. *Journal of Polymer Science Part B : Polymer Physics* **35** (9), 1449–1461.
- LEUNG, K-T., JÓZSA, L., RAVASZ, M. & NÉDA, Z. 2001 Spiral cracks without twisting. *Nature* **410**, 166.
- LIN, Y., TSUI, T. Y & VLASSAK, J.J. 2007 Water diffusion and fracture in organosilicate glass film stacks. *Acta materialia* **55** (7), 2455–2464.
- LIN, Y., TSUI, T. Y & VLASSAK, J.J. 2010 Adhesion degradation and water diffusion in nanoporous organosilicate glass thin film stacks. *Journal of The Electrochemical Society* **157** (2), G53–G56.
- LU, N., WANG, X., SUO, Z. & VLASSAK, J.J. 2007 Metal films on polymer substrates stretched beyond 50%. *Applied Physics Letters* **91** (22), 221909–221909.
- MALZBENDER, J. & DE WITH, G. 2000 Cracking and residual stress in hybrid coatings on float glass. *Thin Solid Films* **359**, 210–214.

- MEI, H., PANG, Y. & HUANG, R. 2007 Influence of interfacial delamination on channel cracking of elastic thin films. *International Journal of Fracture* **148** (4), 331–342.
- MEYER, D.C., LEISEGANG, T., LEVIN, A.A., PAUFLER, P. & VOLINSKY, A.A. 2004 Tensile crack patterns in mo/si multilayers on si substrates under high-temperature bending. *Appl. Phys. A* **78**, 303–305.
- MOON, M.W., JENSEN, H.M., HUTCHINSON, J.W., OH, K.H. & EVANS, A.G. 2002 The characterization of telephone cord buckling of compressed thin films on substrates. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* **50** (11), 2355–2377.
- MORGEN, M., RYAN, E.T., ZHAO, J.H., HU, C., CHO, T. & HO, P.S.P. 2000 Low dielectric constant materials for ulsi interconnects. *Annual Review of Materials Science* **30** (1), 645–680.
- NAM, K.H., PARK, I.H. & KO, S.H. 2012 Patterning by controlled cracking. *Nature* **485**, 221–224.
- NEWBY, B.Z. & CHAUDHURY, M.K. 1998 Friction in adhesion. *Langmuir* **14**, 4865–4872.
- PÉLEGRIN, J. 2000 Les techniques de débitage laminaire au tardiglaciaire : critères de diagnose et quelques réflexions. *L'Europe centrale et septentrionale au tardiglaciaire. Confrontation des modèles régionaux* **7**, 73–86.
- PIÑEIRUA, M., TANAKA, N., BICO, J. & ROMAN, B. 2013 Capillary buckling of a floating annulus. *Soft Matter* .
- POCIVAVSEK, L., DELLSY, R., KERN, A., JOHNSON, S., LIN, B., LEE, K.Y. C & CERDA, E. 2008 Stress and fold localization in thin elastic membranes. *Science* **320** (5878), 912–916.
- PRYCE L., HILTON G., EDELL, D.J. & GLEASON, K.K. 2000 Pulsed-pecvd films from hexamethylcyclotrisiloxane for use as insulating biomaterials. *Chemistry of materials* **12** (11), 3488–3494.
- RAYLEIGH, LORD 1879 On the instability of jets. *Proceedings of the London mathematical society* pp. 4–13.
- ROMAN, B. & BICO, J. 2010 Elasto-capillarity : deforming an elastic structure with a liquid droplet. *Journal of Physics : Condensed Matter* **22** (49), 493101.
- SEMAW, S., ROGERS, M.J., QUADE, J., RENNE, P.R., BUTLER, R.F., DOMINGUEZ-RODRIGO, M., STOUT, D., HART, W.S., PICKERING, T. & SIMPSON, S.W. 2003 2.6-million-year-old stone tools and associated bones

- from ogs-6 and ogs-7, gona, afar, ethiopia. *Journal of Human Evolution* **45** (2), 169–177.
- SENDOVA, M. & WILLIS, K. 2003 Spiral and curved periodic crack patterns in sol-gel films. *Appl. Phys. A* **76**, 957.
- SHORLIN, K.A., DE BRUYN, J.R., GRAHAM, M. & MORRIS, S.W. 2000 Development and geometry of isotropic and directional shrinkage-crack patterns. *Physical Review E* **61** (6), 6950.
- STAFFORD, C.M., HARRISON, C., BEERS, K.L., KARIM, A., AMIS, E.J., VANLANDINGHAM, M.R., KIM, H.C., VOLKSEN, W., MILLER, R.D. & SIMONYI, E.E. 2004 A buckling-based metrology for measuring the elastic moduli of polymeric thin films. *Nature materials* **3** (8), 545–550.
- STEIN, A., MELDE, B.J. & SCHRODEN, R.C. 2000 Hybrid inorganic-organic mesoporous silicates—nanoscopic reactors coming of age. *Advanced Materials* **12** (19), 1403–1419.
- SUN, Y., CHOI, W.M., JIANG, H., HUANG, Y.Y. & ROGERS, J.A. 2006 Controlled buckling of semiconductor nanoribbons for stretchable electronics. *Nature nanotechnology* **1** (3), 201–207.
- SUO, Z. 2003 Reliability of interconnect structures. *Volume 8*, 265–324.
- SUO, Z., SHIH, C.F. & VARIAS, A.G. 1993 A theory for cleavage cracking in the presence of plastic flow. *Acta Metallurgica et Materialia* **41** (5), 1551–1557.
- TAKEI, A., ROMAN, B., BICO, J., HAMM, E. & MELO, F. 2013 Forbidden directions for the fracture of thin anisotropic sheets : An analogy with the wulff plot. *Physical Review Letters* **110** (14), 144301.
- THOULESS, M.D., LI, Z., DOUVILLE, N.J. & TAKAYAMA, S. 2011 Periodic cracking of films supported on compliant substrates. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* **59** (9), 1927–1937.
- TVERGAARD, V. & HUTCHINSON, J.W. 1993 The influence of plasticity on mixed mode interface toughness. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* **41** (6), 1119–1135.
- VELLA, D., BICO, J., BOUDAUD, A., ROMAN, B. & REIS, P.M. 2009 The macroscopic delamination of thin films from elastic substrates. *Proceedings of the National Academy of Sciences* **106** (27), 10901–10906.
- VLASSAK, J.J. 2003 Channel cracking in thin films on substrates of finite thickness. *International Journal of Fracture* **119** (4), 299–323.

- VUKUSIC, P. & SAMBLES, J.R. 2003 Photonic structures in biology. *Nature* **424** (6950), 852–855.
- WAN, N., XU, J., LIN, T., XU, L. & CHEN, K. 2009 Observation and model of highly ordered wavy cracks due to coupling of in-plane stress and interface debonding in silica thin films. *Phys. Rev. B* **80**, 014121.
- WANG, J.S. 1995 Interfacial fracture toughness of a copper/alumina system and the effect of the loading phase angle. *Mechanics of materials* **20** (3), 251–259.
- WEI, Y. & HUTCHINSON, J.W. 1999 Models of interface separation accompanied by plastic dissipation at multiple scales. *International Journal of Fracture* **95** (1-4), 1–17.
- WILLIAMS, M.L. *et al.* 1952 Stress singularities resulting from various boundary conditions in angular corners of plates in extension. *J. Appl. Mech* **19** (4), 526–528.
- WU, D., YIN, Y.J., XIE, H.M. & DAI, F.L. 2013 Archimedes spiral cracks developed in a nanofilm/substrate system. *Chin. Phys. Lett* **30**, 036801.
- XIA, Z.C. & HUTCHINSON, J.W. 2000 Crack patterns in thin films. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* **48** (6), 1107–1131.
- YU, H.H., HE, M.Y. & HUTCHINSON, J.W. 2001 Edge effects in thin film delamination. *Acta materialia* **49** (1), 93–107.
- YU, H.H. & HUTCHINSON, J.W. 2002 Influence of substrate compliance on buckling delamination of thin films. *Int. J. Fract.* **113**, 39–55.
- YUSE, A. & SANO, M. 1993 Transition between crack patterns in quenched glass plates. *Nature* **362**, 329–331.
- ZABELS, R., MUKTEPAVELA, F., GRIGORJEVA, L., TAMANIS, E. & MISHELS-PIESINS, M. 2010 Nanoindentation and photoluminescence characterization of zno thin films and single crystals. *Optical Materials* **32** (8), 818–822.